



**Développement et caractérisation d'une cible active  
scintillante pour l'étude de la fission et étude des  
possibilités de calorimétrie de la fission avec le détecteur  
CARMEN**  
Sylvain Vayre

► **To cite this version:**

Sylvain Vayre. Développement et caractérisation d'une cible active scintillante pour l'étude de la fission et étude des possibilités de calorimétrie de la fission avec le détecteur CARMEN. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris Sud - Paris XI, 2015. Français. NNT : 2015PA112037 . tel-01179398

**HAL Id: tel-01179398**  
**<https://theses.hal.science/tel-01179398>**

Submitted on 22 Jul 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# UNIVERSITE PARIS-SUD

ECOLE DOCTORALE : MIPEGE (ED 534)  
Laboratoire CEA,DAM,DIF

DISCIPLINE : Physique

## THESE DE DOCTORAT

Soutenue le 27 mars 2015  
par

**Sylvain VAYRE**

**Développement et caractérisation d'une cible active  
scintillante pour l'étude de la fission  
et étude des possibilités de calorimétrie  
de la fission avec le détecteur CARMEN**

Directeur de thèse : :Yl. Jean-luc SIDA  
Encadrant : :Yl. Gilbert BELIER

Chercheur (CEA/DSM)  
Chercheur (CEA/DAM-DIF)

Composition du jury :

Président du jury : :Yl. Fabian ZO:YIER  
Rapporteurs: :Yl. Stéphane NORMAND  
:Ylme. Louise STUTTGE  
Examineurs: :Yl. Laurent TASSAN-GOT  
:Yl. Franck GOBET

Professeur (LAL)  
Chercheur (CEA)  
Chercheur (IPHC-DRS)  
Directeur de recherche (IP:-J Orsay)  
Professeur (CENBG)





## Remerciements

Tout d'abord, je tiens à exprimer toute ma gratitude envers Gilbert BELIER pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire mais surtout pour m'avoir supporté et encadré sans relâche. Avec pédagogie et optimisme, il a su me transmettre le goût de la recherche tout au long de ces trois années de thèse et malgré quelques déconvenues expérimentales.

Je remercie l'ensemble des membres du jury pour leur lecture attentive de mon manuscrit ainsi que pour l'intérêt qu'ils y ont porté, et plus particulièrement M. Stéphane NORMAND et Mme. Louise STUTTGE pour avoir accepté d'être rapporteurs.

Je tiens également à remercier tous ceux qui ont participé de loin ou de près à la réalisation de ce projet de thèse. Je remercie Jean-Luc SIDA d'avoir accepté d'être le directeur officiel de cette thèse très expérimentale et très R&D. Je remercie tout particulièrement Jean AUPIAIS pour son aide et son expertise "radiochimique", et grâce à qui j'ai appris à manipuler quelques actinides dans des conditions optimales. Je remercie également Aurélien BLANC et Matthieu HAMEL pour leur aide à la réalisation d'expériences rapides mais nécessaire pour la finalisation de ce travail. Je tiens également à remercier l'équipe Faster du LPC pour les nombreux dialogues sur le fonctionnement de Faster, et tout particulièrement Jean HOMMET qui m'a souvent permis d'y voir plus clair. Je tiens également à remercier mon voisin de bureau Thomas BONNET qui m'a conseillé et encouragé dans cette dernière année.

De manière générale, je remercie l'ensemble du Laboratoire DNE et du Service de Physique Nucléaire pour leur accueil. Il y règne une bonne humeur permanente qui font de ces trois ans un excellent souvenir rempli de travail mais aussi de moments de détente inoubliables. Pour tout cela, je remercie donc sincèrement tous ceux que j'ai pu côtoyer au long de ces trois années : Julie, Alix, Camille, Raphaël, Marc D. et Marc V., Guillaume B. et Guillaume B., Audrey, Thomas G., Daniel, Julien L., Caroline, Olivier, Maxime, Lucie, Benoît, Julien T., Laurent, Cyril, Jean-Marc et Nathalie ainsi que tous les membres de *Los h Dos*. Enfin, je ne peux m'empêcher de remercier spécialement Noël et Dos, inlassables dans le comique ou les répétitions, mais aussi le comique de répétition...

Je remercie également mes amis qui m'ont peu vu en cette fin de thèse mais toujours supporté et encouragé. Enfin, je remercie mes parents pour leurs encouragements et leur aide tout au long de mes études, avec une pensée pour mon grand-père qui n'aura malheureusement pas pu en voir l'aboutissement.





# Table des matières

	Page
<b>Motivations</b>	<b>1</b>
 <b>I La cible active scintillante</b>	 <b>9</b>
<b>1 La scintillation</b>	<b>13</b>
1.1 Les scintillateurs . . . . .	14
1.2 Rappels sur l'interaction rayonnement-matière . . . . .	17
1.3 Mécanisme de la scintillation dans les liquides organiques . . . . .	24
 <b>2 Développement de la cible active scintillante</b>	 <b>33</b>
2.1 L'extraction liquide-liquide . . . . .	33
2.2 Dispositifs . . . . .	34
2.3 Efficacité de détection . . . . .	38
2.4 Distorsion du spectre de neutrons induisant la fission dans la cible active scintillante . . . . .	47
2.5 Discrimination des évènements dans la cible active scintillante . . . . .	50
2.6 Résolutions en énergie et réponse du scintillateur aux fragments de fission . . . . .	62
2.7 Etude de cocktails scintillants . . . . .	65
2.8 Etude de vieillissement . . . . .	77
2.9 Conclusions . . . . .	79
 <b>3 Mesure de section efficace de fission</b>	 <b>83</b>
3.1 Motivations . . . . .	83
3.2 Dispositif expérimental . . . . .	86
3.3 Résultats . . . . .	91
3.4 Conclusions . . . . .	96
 <b>II Les possibilités d'étude énergétique de la fission avec le détecteur CARMEN</b>	 <b>99</b>
 <b>4 Le détecteur CARMEN</b>	 <b>103</b>
4.1 Description du détecteur . . . . .	103
4.2 Les tubes photomultiplicateurs . . . . .	109
4.3 Le système d'acquisition . . . . .	110

<b>5</b>	<b>Calibration de CARMEN</b>	<b>115</b>
5.1	Alignement des gains . . . . .	115
5.2	Calibration en énergie gamma . . . . .	117
5.3	Remarques : performances du liquide scintillant . . . . .	119
5.4	Calibration en énergie neutron . . . . .	125
<b>6</b>	<b>Etude préliminaire de la calorimétrie avec CARMEN</b>	<b>133</b>
6.1	Etude du pic prompt par simulation Monte Carlo . . . . .	134
6.2	Résultats : contribution des rayonnements gamma et des neutrons à la mesure de l'énergie totale neutron . . . . .	141
6.3	Remarques sur les mesures de J. Fréhaut et H. Nifenecker . . . . .	143
6.4	Perspectives d'optimisation de la calorimétrie gamma et neutron avec CARMEN . . . . .	145
6.5	Récapitulatif . . . . .	149
	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>151</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>153</b>
	<b>Appendices</b>	<b>159</b>
<b>A</b>	<b>Etude de cocktails scintillants</b>	<b>160</b>
A.1	Liquides avec du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	160
A.2	Plastiques avec du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	161
A.3	Plastiques avec du $^{252}\text{Th}$ . . . . .	164
<b>B</b>	<b>Coefficients d'atténuation des photons dans le pseudocumène</b>	<b>167</b>
<b>C</b>	<b>Spectre en énergie des rayonnements gamma émis lors d'une réaction de capture de neutrons par du gadolinium</b>	<b>168</b>
<b>D</b>	<b>Efficacité de détection des neutrons dans CARMEN</b>	<b>169</b>
<b>E</b>	<b>Efficacité de détection des rayonnements gamma dans CARMEN</b>	<b>170</b>
<b>F</b>	<b>Simulations Monte-Carlo pour la vérification du calibrage en énergie neutron</b>	<b>171</b>
F.1	Géométrie simulée . . . . .	171
F.2	Spectres en énergie des neutrons émis par une source Am-Be utilisés pour les simulations . . . . .	173
	<b>Table des figures</b>	<b>174</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>181</b>







# Motivations

Le phénomène de fission nucléaire a été découvert il y a plus de 75 ans. C'est en 1939, suite à une expérience de bombardement d'uranium par des neutrons réalisée par O. Von Hahn et F. Strassmann mettant en évidence la production de baryum, que Lise Meitner et Otto R. Frisch publient la première interprétation théorique du phénomène de fission nucléaire[64]. Depuis lors, la fission a été intensément étudiée; études motivées notamment par son application dans les domaines militaires et civils. Malgré des décennies d'études, la fission est encore mal comprise et suscite toujours un fort engouement dans la recherche en physique nucléaire, tant sur le plan des applications que sur le plan fondamental au travers d'expériences et de modélisations théoriques. Dans le cas des applications, une meilleure connaissance des émissions de particules que la fission engendre est nécessaire pour le développement des applications futures. Le design et le développement des futurs réacteurs nucléaires sont fortement contraints par des règles de sûreté et s'appuient sur des données évaluées qui doivent être de plus en plus précises. On peut citer par exemple les noyaux produits lors d'une fission, dont l'inventaire précis impacte le dimensionnement du cœur d'un réacteur. On peut citer également l'émission de rayonnements gamma et l'énergie totale qu'ils emportent lors d'une fission, qui est la principale source d'échauffement de la cuve des réacteurs nucléaires. Sur un plan plus fondamental, la fission est un processus complexe, dynamique et difficile à décrire qui met en jeu de grandes déformations et la désexcitation de fragments riches en neutrons. Une meilleure compréhension de ce phénomène passe par la mesure expérimentale des différentes observables permettant de contraindre et d'améliorer les modèles théoriques.

## Le processus de fission

Le phénomène de la fission nucléaire représente la cassure en plusieurs fragments d'un noyau dès lors qu'il est dans un état suffisamment excité. Ce phénomène peut être induit par des particules telles que les neutrons ou les rayonnements gamma, on parle de fission induite par neutrons ou par rayonnements gamma (photofission), qui interagissent avec le noyau et lui apportent une énergie d'excitation suffisante. Il peut également avoir lieu spontanément lorsqu'un noyau très lourd est instable : il possède une probabilité non nulle de fissionner spontanément et on parle de fission spontanée.

Avant de fissionner, le noyau excité est très déformé permettant la formation de deux "pré-fragments" reliés par un col que l'on nomme fragments naissants. Lorsque la scission a lieu, les fragments se séparent, s'éloignent et vont se désexciter selon différents processus. Ces fragments sont désormais appelés fragments de fission pri-

maires. Ils se partagent l'énergie disponible dans le système, entre 180 et 240 MeV, sous forme d'énergie cinétique (TKE<sup>1</sup>) et d'énergie d'excitation (TXE<sup>2</sup>), possèdent un moment angulaire élevé ( $\simeq 7\hbar$ ) et leur répartition en masse est généralement asymétrique. Le processus de fission est représenté sur la figure 1.

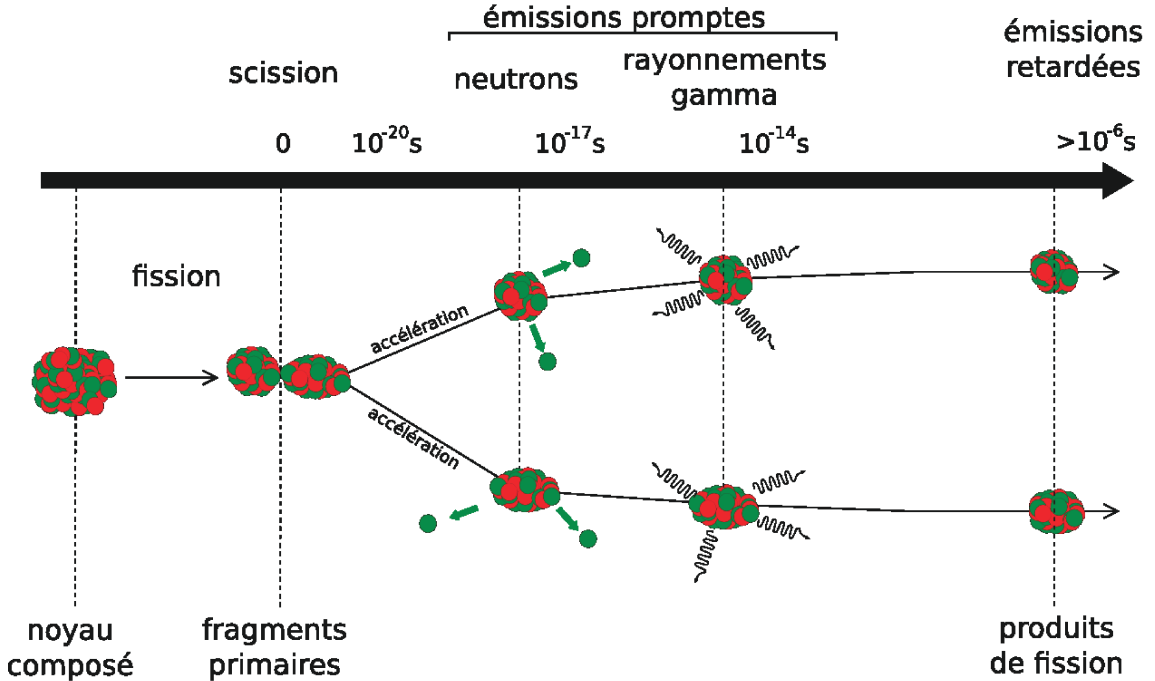


FIGURE 1 – Représentation schématique du processus de fission extrait de la référence [96].

Dans des temps de l'ordre de  $10^{-20}$  s, les fragments sont accélérés sous l'effet de la répulsion coulombienne et acquièrent environ 90% de leur énergie cinétique finale. Elle s'élève généralement entre 75% et 85% de l'énergie disponible, soit de 140 à 200 MeV. La systématique de Viola[95] permet de calculer l'énergie cinétique totale moyenne des fragments en fonction de la masse et de la charge du système fissionnant. Elle donne pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  et la fission induite par neutrons du  $^{239}\text{Pu}$  et de  $^{235}\text{U}$  respectivement 188 MeV, 176 MeV et 170 MeV. L'énergie d'excitation des fragments primaires est ensuite dissipée sous forme d'émission prompte de particules : les neutrons et les rayonnements gamma.

Dans des temps caractéristiques de l'ordre de  $10^{-17}$  s, les fragments primaires émettent un ou plusieurs neutrons qui emportent environ 10% de l'énergie libérée lors d'une fission, soit de 20 MeV à 25 MeV. L'émission de neutron n'est plus possible dès lors que l'énergie d'excitation des fragments primaires est inférieure à l'énergie de séparation d'un neutron dans le noyau (notée  $S_n \simeq 5$  MeV).

Lorsque l'énergie d'excitation des fragments primaires est proche de  $S_n$ , un processus de désexcitation par émission de rayonnements entre en compétition avec l'émission de neutrons et devient la seule voie de désexcitation des fragments lorsqu'ils ne peuvent plus émettre de neutrons. Ce processus est gouverné par l'interaction électro-magnétique et a lieu dans des temps caractéristiques supérieurs à

1. Total Kinetic Energy  
2. Total Excitation Energy

$10^{-14}$  s. Ces émissions de rayonnements gamma emportent le moment angulaire des fragments primaires et environ 4% de l'énergie disponible initiale, soit entre 7 MeV et 10 MeV.

Enfin, dans des temps caractéristiques très supérieurs aux phénomènes précédents, les fragments primaires riches en neutrons peuvent subir des décroissances  $\beta^-$  et émettre des neutrons ou des rayonnements gamma pour atteindre la stabilité. Ces processus, nommés processus retardés, conduisent à la formation des produits de fission et ne nous intéressent pas dans l'étude du processus de fission. Ils emportent entre 15 MeV et 20 MeV.

### Les données expérimentales

Nous pouvons mesurer différentes observables pour contraindre et affiner les modèles théoriques décrivant la fission telles que la multiplicité des neutrons prompts, des rayonnements gammas et leurs énergies, ainsi que les masses et charges des fragments de fission et leurs énergies cinétiques.

L'énergie cinétique des fragments de fission va varier selon la masse et la charge des fragments, mais également selon le système fissionnant. Elle permet d'obtenir des informations sur le type de fragmentation et les déformations en jeu. Un exemple est présenté sur la figure 2 [70]. Elle représente l'énergie cinétique moyenne individuelle des fragments en fonction de leur masse pour la fission induite par neutrons thermiques du  $^{239}\text{Pu}$ . Les énergies cinétiques moyennes des fragments légers restent constantes, celles des fragments lourds diminuent à partir de la masse  $A \simeq 130 - 132$  et on observe une diminution autour de la symétrie ( $A = 121$ ).

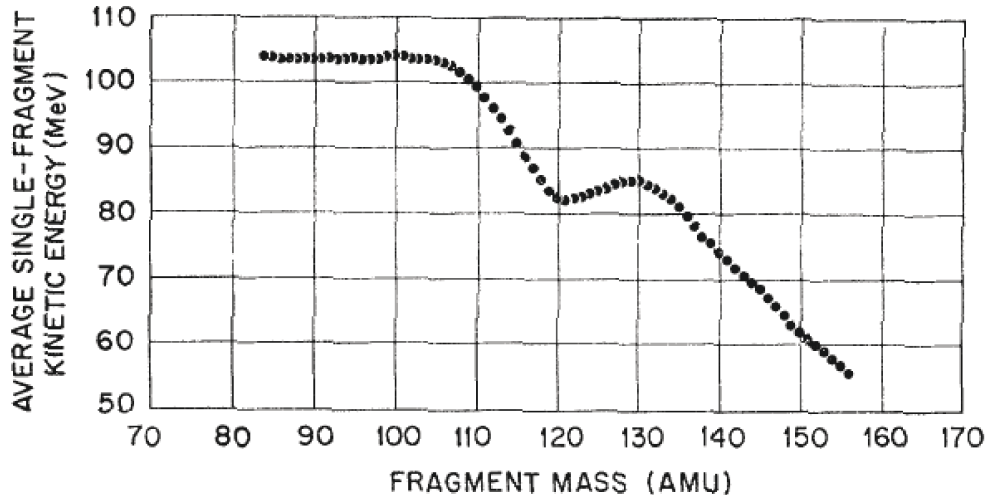


FIGURE 2 – Energie cinétique moyenne individuelle des fragments en fonction de leur masse pour la fission induite par neutrons thermiques du  $^{239}\text{Pu}$ . Figure extraite de la référence [70].

Ces évolutions reflètent l'existence de différents types de fragmentations ou modes de fission [16], avec des déformations plus ou moins importantes. Les fragmentations symétriques par exemple donnent lieu à une énergie cinétique totale plus faible et

indiquent que les fragments sont formés avec une grande déformation.

L'énergie d'excitation d'un fragment primaire est répartie dans chaque fragment sous forme d'énergie d'excitation intrinsèque et d'énergie d'excitation des modes collectifs (déformations, vibrations, rotations). Elle dépend de la fragmentation (donc de la masse  $A$  et de l'énergie cinétique  $E_k$  du fragment) et conduit à différentes émissions promptes que nous pouvons mesurer :

$$E^*(A, E_k) = \bar{\nu}(A, E_k) \times [S_n(A, Z) + \bar{\eta}(A, E_k)] + \bar{E}_\gamma(A, E_k)$$

où  $E^*$  est l'énergie d'excitation,  $\bar{\nu}$  la multiplicité moyenne de neutrons émis,  $S_n$  l'énergie de séparation du neutron,  $\bar{\eta}$  l'énergie moyenne des neutrons émis et  $\bar{E}_\gamma$  l'énergie totale gamma moyenne.

Les émissions de neutrons proviennent en partie de la relaxation de la déformation des fragments et de la dissipation de leur énergie d'excitation intrinsèque. Expérimentalement, on peut mesurer leur multiplicité et leur énergie cinétique. Par exemple la multiplicité de neutrons émis en fonction de la masse des fragments de fission, telle que représentée sur les figures 3a et 3b, fournit des informations sur le type de fragmentation et les déformations mises en jeu. Elle présente une structure typique en "dents de scie" où l'on peut remarquer un minimum associé à des fragments lourds sphériques (autour de la masse  $A = 132$ ) et un maximum associé à son fragment complémentaire déformé.

Le nombre de neutrons émis est fortement corrélé à la déformation du fragment et l'on peut s'en rendre compte grâce à la figure 3a qui représente la multiplicité de neutrons en fonction de la masse du fragment pour la fission spontanée du  $^{256}\text{Fm}$  mesurée par J. Gindler [40] (cercles ouverts) et calculée par N. Dubray et al. [30] (cercles pleins). La multiplicité de neutrons calculée par N. Dubray provient de calculs microscopiques. Elle est déduite du calcul de l'énergie de déformation du fragment en supposant que cette dernière est dissipée uniquement par émission de neutrons prompts. Elle représente donc les variations de l'énergie de déformation des fragments et montre une forte corrélation entre le nombre de neutrons émis et la déformation du fragment.

L'émission de neutrons peut également donner des informations sur l'excitation intrinsèque des fragments comme le montre la figure 3b représentant la multiplicité moyenne de neutrons en fonction de la masse du fragment dans la fission induite par neutrons rapides du  $^{237}\text{Np}$  mesurée par A.A. Naqvi et al. [67]. Les points bleus représentent les mesures pour des neutrons d'énergie incidente  $E_n = 0,8$  MeV et les points rouges pour des neutrons d'énergie incidente  $E_n = 5,55$  MeV. Lorsque l'énergie d'excitation apportée au système fissionnant augmente, on remarque une augmentation du nombre moyen de neutrons émis par le fragment lourd et pas d'augmentation pour le fragment léger. Dans ce cas, cela signifie que l'énergie d'excitation ajoutée est récupérée par le fragment lourd. L'interprétation de cet effet suscite un débat parmi les différents modèles décrivant la fission [50, 57, 85].

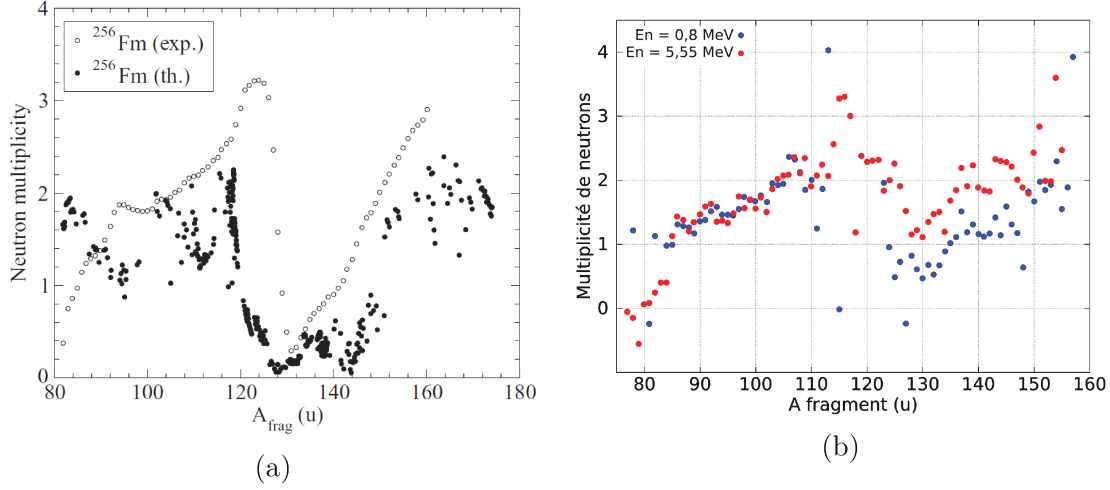


FIGURE 3 – (a) Multiplicité de neutrons prompts en fonction de la masse des fragments primaires dans la fission spontanée du  $^{256}\text{Fm}$ . Les cercles ouverts représentent des mesures par J. Gindler [40] et les cercles pleins représentent les calculs par N. Dubray et al. [30]. (b) Multiplicité de neutrons prompts en fonction de la masse des fragments primaires dans la fission induite par neutrons rapides du  $^{237}\text{Np}$  mesurée par A.A. Naqvi [67].

Les émissions de rayonnements gamma proviennent de la dissipation de l'énergie d'excitation des modes collectifs tels que la vibration et la rotation des fragments de fission. Une représentation simplifiée de la désexcitation des fragments de fission consiste à considérer que ces derniers se désexcitent par évaporation de neutrons jusqu'à ce que leur énergie d'excitation soit inférieure à l'énergie de séparation d'un neutron dans le fragment ( $S_n$ ). Néanmoins, les fragments de fission sont produits avec un moment angulaire élevé qui n'est pas réduit par l'émission de neutrons [98]. Ce moment angulaire constitue une énergie de rotation [58] disponible pour les émissions de rayonnements gamma, permettant leur émission à des énergies d'excitation supérieures à  $S_n$  et leur compétition avec l'émission de neutrons.

Cette compétition est visible lorsque l'on mesure l'énergie totale gamma moyenne rayonnée dans la fission ( $\bar{E}_{\gamma,\text{tot}}$ ) dont quelques valeurs sont répertoriées dans le tableau 1 pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ , la fission induite par neutrons thermiques du  $^{239}\text{Pu}$  et du  $^{235}\text{U}$ , ainsi que pour la fission induite par neutrons rapides du  $^{237}\text{Np}$ , du  $^{235}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Ces valeurs moyennes sont supérieures aux énergies de séparation du neutron dans les fragments, de l'ordre de 4 à 5 MeV. La mesure de l'énergie totale gamma rayonnée en fonction de la multiplicité neutronique permet également d'étudier cette compétition entre émission de neutrons et de rayonnements gamma. De telles mesures existent uniquement pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  [71] et pour la fission induite par neutrons rapides du  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  [35]. Les mesures de H. Nifenecker et al. montrent une relation linéaire entre l'énergie totale gamma rayonnée et la multiplicité moyenne de neutrons :

$$E_{\gamma}(A, E_k) = 0,75 \times \bar{\nu}(A, E_k) + 2$$

Les mesures de J. Fréhaut montrent également une corrélation entre l'énergie totale gamma rayonnée et la multiplicité moyenne de neutrons comme on peut le voir sur les figures 4. Elles représentent la multiplicité moyenne de neutrons (échelle de gauche) et l'énergie totale gamma rayonnée (relative au  $^{252}\text{Cf}$ , échelle de droite) en fonction

de l'énergie du neutron incident pour les trois noyaux cités précédemment. Sur toute la gamme en énergie des neutrons incidents, entre 2 et 15 MeV, on observe également une augmentation linéaire du nombre moyen de neutrons émis et de l'énergie totale gamma rayonnée, indicateur d'une compétition neutron–gamma.

Reaction	$\bar{E}_{\gamma,\text{tot}}$ (MeV)	Référence
$^{252}\text{Cf}(\text{sf})$	6, 5	H. Nifenecker et al.[71]
	$6, 64 \pm 0, 08$	R. Billnert et al.[11]
	$6, 65 \pm 0, 12$	R. Billnert et al.[11]
	$6, 7 \pm 0, 4$	E. Nardi et al.[69]
	6, 84	V. V. Verbinski et al.[94]
	$7, 06 \pm 0, 35$	F. Pleasonton et al.[78]
	8, 2	A. B. Smith et al.[87]
	8, 52	A. Chyzh et al.[20]
$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$6, 73 \pm 0, 35$	F. Pleasonton[77]
	$6, 81 \pm 0, 30$	V. V. Verbinski et al.[94]
	7, 94	A. Chyzh et al.[20]
$^{237}\text{Np}(\text{n},\text{f})$	$6, 60^{\ddagger}$	J. Fréhaut[35]
	$8, 21^{\S}$	
$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$6, 43 \pm 0, 30$	F. Pleasonton et al.[79]
	$6, 51 \pm 0, 35$	V. V. Verbinski et al.[94]
	$6, 92 \pm 0, 09$	A. Oberstedt et al.[73]
	$7, 25 \pm 0, 26$	R.W. Peelle et al.[75]
	8, 35	A. Chyzh et al.[20]
$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$	$6, 51^{\ddagger}$	J. Fréhaut[35]
	$7, 68^{\S}$	
$^{232}\text{Th}(\text{n},\text{f})$	$5, 66^{\ddagger}$	J. Fréhaut[35]
	$6, 30^{\S}$	

TABLE 1 – Energie totale gamma moyenne rayonnée dans la fission de différents noyaux, mesures provenant de la littérature.

$\ddagger$ .  $E_n = 2, 37$  MeV

$\S$ .  $E_n = 14, 7$  MeV

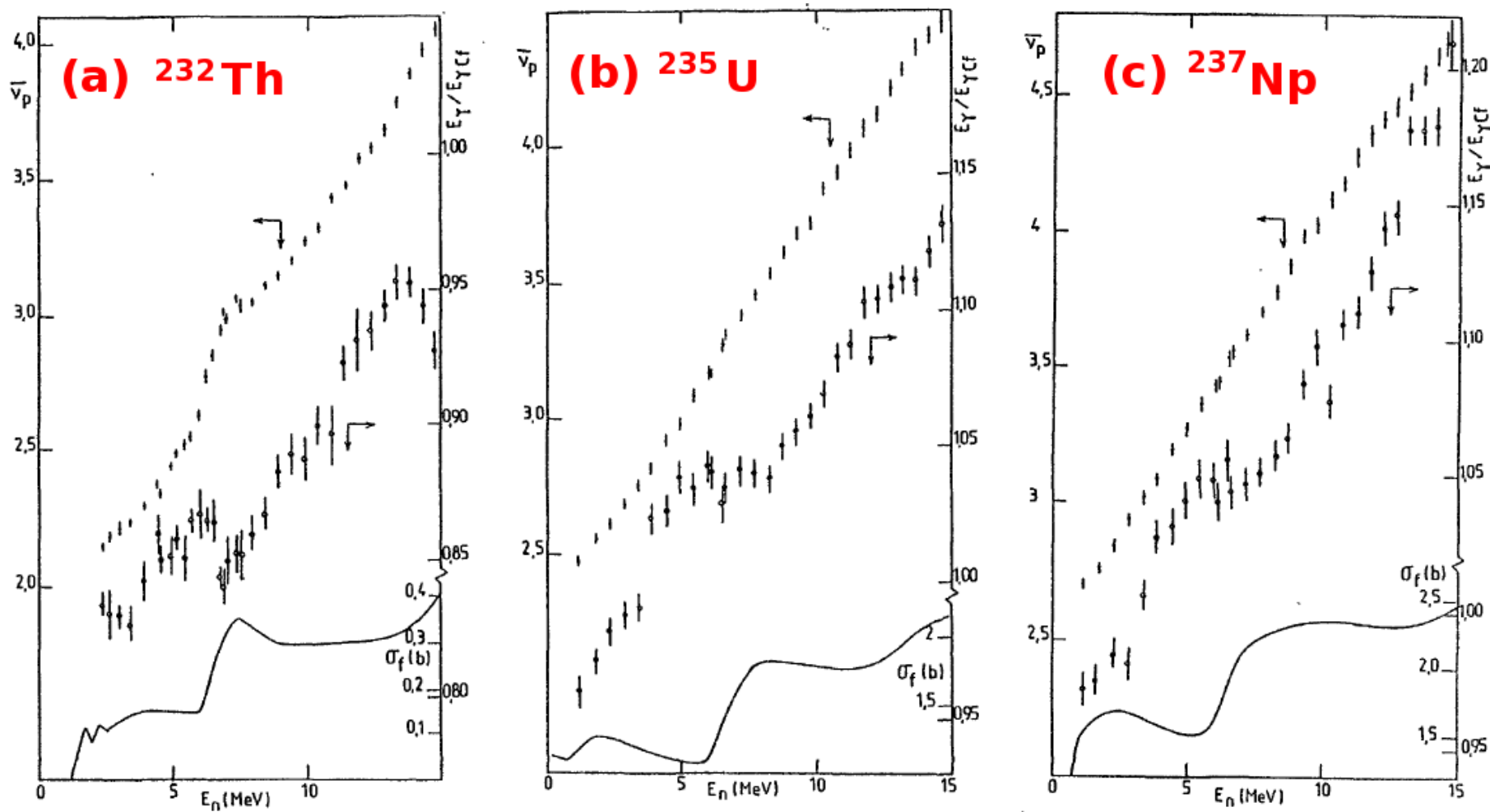


FIGURE 4 – Multiplicité moyenne de neutrons (échelle de gauche) et énergie totale gamma rayonnée (relative au  $^{252}\text{Cf}$ , échelle de droite) en fonction de l'énergie du neutron incident pour la fission induite par neutrons rapides du  $^{232}\text{Th}$ (a),  $^{235}\text{U}$ (b) et  $^{237}\text{Np}$ (c).

## **L'étude de la fission avec CARMEN**

La désexcitation des fragments de fission reste mal comprise et les modèles théoriques ne permettent pas de prédire et d'expliquer toutes les corrélations observées dans la fission. Il y a un besoin important de données simultanées sur les émissions de neutrons et de rayonnements gamma et sur l'énergie cinétique des fragments de fission. Dans ce contexte, l'utilisation d'un détecteur de fragments de fission avec le détecteur CARMEN permettrait de fournir des données contraignantes pour les modèles grâce à la mesure simultanée de la multiplicité neutronique, de l'énergie totale gamma rayonnée, de l'énergie cinétique totale des fragments et potentiellement de l'énergie totale neutron. L'objectif de ce travail de thèse consiste donc à développer un détecteur de fragments de fission et à l'utiliser en association avec CARMEN pour réaliser des mesures calorimétriques de la fission.

La première partie de mon travail de thèse a été destinée au développement, à la caractérisation et à l'utilisation d'un nouveau détecteur pour l'étude de la fission basé sur la scintillation liquide et nommé cible active scintillante. Nous verrons que ce type de détecteur peut être utilisé comme trigger fission pour différentes mesures de sections efficaces de fission, de taux de fission spontanée ou encore de veto fission. Nous verrons également que ce détecteur ne peut pas mesurer l'énergie cinétique totale des fragments de fission, et donc ne pourra pas être utilisé avec le détecteur CARMEN pour réaliser des mesures calorimétriques.

La seconde partie de mon travail concerne l'étude calorimétrique de la fission avec le détecteur CARMEN. Ce travail a consisté en la remise en route du détecteur CARMEN et en l'étude de ses capacités à mesurer les énergies totales gamma et neutron. Ce type de mesures n'ayant jamais été réalisées avec CARMEN, nous avons dû caractériser et simuler sa réponse aux rayonnements gamma et aux neutrons.



**Première partie**

**La cible active scintillante**



Dans le domaine de la détection de la fission, différents types de détecteurs sont couramment utilisés. Nous pouvons citer par exemple la chambre à fission qui est un détecteur classique en physique nucléaire. Il s'agit d'une enceinte hermétique contenant un gaz sous pression dans lequel les fragments de fission déposent la plupart de leur énergie par ionisation. L'actinide à étudier est présent sous forme de dépôt solide, et la chambre peut contenir un ou plusieurs dépôts dont l'homogénéité est un paramètre important qui impacte la résolution en énergie et l'efficacité de détection. Les chambres à fission permettent de discriminer les décroissances alpha des fragments de fission mais ce sont des détecteurs lents dont la discrimination alpha-fission est dégradée lorsque l'activité des dépôts étudiés est importante. On peut citer les détecteurs PPAC<sup>1</sup> également utilisés pour la détection des fragments de fission [43]. Il s'agit d'un détecteur gazeux contenant deux électrodes parallèles distantes de quelques millimètres. Les fragments de fission ionisent le gaz et forment des avalanches d'électrons migrant vers l'anode. Ces détecteurs sont très rapides, avec une résolution en temps de l'ordre de la centaine de picoseconde, mais ne permettent pas de discriminer les décroissances alpha des fragments de fission à cause du faible espacement des électrodes. Enfin, on peut citer les détecteurs semi-conducteurs diamants [74] principalement utilisés pour leur réponse rapide et leur résistance aux radiations mais leur fabrication est difficile.

La première partie de ce travail de thèse porte sur le développement et l'utilisation d'un nouveau détecteur pour l'étude de la fission nommé cible active scintillante. Son intérêt est d'utiliser les avantages des scintillateurs liquides pour étudier les actinides : une réponse rapide, la possibilité de discriminer les particules et la facilité de fabrication. L'actinide à étudier est directement mis en solution dans le volume "actif" du détecteur grâce à la méthode de l'extraction liquide-liquide. Cela permet d'atteindre des efficacités de détection très élevées et d'effectuer plusieurs mesures avec le même détecteur telles que : la mesure de la masse d'actinide grâce aux décroissances alpha, la mesure de la fission grâce à la détection des fragments de fission et potentiellement la mesure du flux de neutrons grâce à l'hydrogène présent dans le scintillateur.

Cette première partie est donc destinée à la présentation, au développement et à l'utilisation de la cible active scintillante pour l'étude de la fission.

Le premier chapitre sera consacré à la présentation de la détection des rayonnements grâce à la scintillation, tout particulièrement la scintillation liquide organique sur laquelle est basé notre détecteur. Après un bref historique de la découverte et de l'utilisation des scintillateurs, nous vous présenterons les différents scintillateurs utilisés actuellement en physique nucléaire. Nous vous présenterons ensuite leurs interactions avec les rayonnements ionisants ainsi que les mécanismes physiques à l'origine de la scintillation dans les liquides organiques.

Le second chapitre détaillera les performances de la cible active scintillante ainsi que les développements réalisés. La méthode de fabrication de la cible active par extraction liquide-liquide et les différents dispositifs que nous avons mis en place seront présentés. Nous détaillerons également la caractérisation de son efficacité de détection par simulation Monte Carlo, l'étude et l'optimisation de ses performances

---

1. PPAC : Parallel Plate Avalanche Counter

pour l'identification des particules. Nous vous présenterons ensuite une étude exhaustive de nouveaux cocktails scintillants liquides et plastiques réalisée dans le but d'améliorer les performances de notre détecteur. Enfin, la caractérisation du vieillissement de la cible active scintillante dans les conditions d'une expérience sous haut flux de neutrons et taux de fissions sera détaillée.

Le dernier chapitre sera destiné à l'utilisation de la cible active scintillante dans les expériences de physique nucléaire où nous vous présenterons une étude de faisabilité de la mesure d'une section efficace de fission induite par neutrons d'énergie inférieure à 100 keV dans un spectromètre à ralentissement de neutrons.

# Chapitre 1

## La scintillation

Les premières utilisations de la scintillation remontent au début du XX<sup>e</sup> siècle, notamment dès 1903, lorsque *Sir W. Crookes* met en évidence l'émission alpha du radium, qu'il nommera "émanations du radium" [23], grâce au phénomène de scintillation. Lors d'expériences avec un résidu de radium, il dispose d'un écran de tétracyanoplatinate de baryum (ou platinocyanure de baryum) ainsi que d'un écran de sulfure de zinc (ZnS), dont les propriétés de phosphorescence sont déjà connues depuis la fin du XIX<sup>e</sup> siècle.

En approchant le résidu de radium de la plaque de platinocyanure de baryum, il observe une émission lumineuse homogène qui disparaît dès le retrait du radium. Dans le cas de la plaque de ZnS, il observe une émission de lumière résiduelle, non homogène qu'il décrit comme des spots lumineux. Il peut ainsi compter à l'œil nu les événements de scintillation dès lors que le radium est à quelques centimètres de la plaque de ZnS. Cette découverte pose les bases du comptage par scintillation, et sera confirmée par la suite avec des études exhaustives du rayonnement alpha.

Les comptages visuels restant très approximatifs et limités en taux de comptage, ont été remplacés dans les années 1930 par des compteurs à scintillation gazeux ou des chambres d'ionisation suite au développement d'électronique dédiée. Ce n'est que dans les années 1940, avec le développement des tubes photomultiplicateurs pendant la Seconde Guerre Mondiale, que les comptages par scintillation se sont répandus dans le monde de la physique nucléaire. Dès 1944, *Curran* et *Baker* couplent un écran de sulfure de zinc à un tube photomultiplicateur et détectent des alphas d'énergie 2 MeV via un oscilloscope [24]. En 1947, *Coltman* et *Marshall* utilisent également un écran fluorescent couplé à un photomultiplicateur pour détecter des rayonnements [62]. Leur système dispose d'un design plus poussé incluant des réflecteurs afin d'améliorer la collecte de lumière du détecteur. La même année, *Kallman* [48] utilise un scintillateur organique, un cristal de naphthalène, pour détecter des rayonnements alpha, beta et gamma. Quelques années plus tard en 1950, *M. Ageno et al.* [2] démontrent qu'il est également possible de détecter les rayonnements alpha, beta et gamma grâce à un scintillateur liquide organique à base de xylène et de naphthalène. Il est ainsi possible de détecter les rayonnements alpha, beta, gamma, ou encore les neutrons et les ions lourds, grâce à des scintillateurs organiques liquides qui ont été largement utilisés dans le cadre de la spectrométrie beta, alpha ou gamma. On peut citer notamment la technique PERALS®(Photon/Electron-Rejecting Alpha Liquid Spectrometry) développée par *McKvleen* et *McDowell* [63]

dans les années 1980 et actuellement commercialisée par Ordela Inc. Cette technique, à la base du développement de notre cible active scintillante, consiste à mettre un actinide en solution dans le liquide organique scintillant par la méthode de l'extraction liquide-liquide. Elle sera présentée plus en détail dans le chapitre 2. Pour le moment nous allons aborder une présentation des scintillateurs couramment utilisés ainsi que de leurs caractéristiques générales. Nous nous focaliserons ensuite sur les liquides organiques en détaillant les mécanismes de la scintillation mis en jeu dans ces-derniers.

## 1.1 Les scintillateurs

Par définition, la scintillation (aussi appelée fluorescence) est le phénomène d'émission de lumière par un matériau suite à une irradiation. Pour être un bon scintillateur, un matériau doit posséder les propriétés suivantes :

- Un bon rendement en lumière : l'émission de lumière dépend de l'énergie déposée par le rayonnement, du type de rayonnement ainsi que du matériau scintillant. Pour un scintillateur, le rendement en lumière s'exprime en nombre de photons par méga-électronvolt d'énergie déposée et impacte directement la résolution en énergie du scintillateur.
- Une décalage de Stokes suffisamment important, i.e. transparence à sa propre lumière afin de minimiser la réabsorption de la lumière émise par le scintillateur lui-même.
- Des temps de réponse rapides pour permettre des taux de comptage importants.

Une autre propriété importante de certains scintillateurs est la PSD<sup>1</sup> ou discrimination de forme des signaux. Comme nous le détaillerons au paragraphe 1.3, la lumière de fluorescence peut avoir deux caractéristiques temporelles qui diffèrent selon le type de rayonnement ionisant. Cette propriété permet par exemple de distinguer un dépôt d'énergie dû à un neutron d'un dépôt d'énergie dû à un gamma.

Les scintillateurs peuvent être classés en 4 catégories : les inorganiques (cristaux), les gaz, les verres et les organiques (cristaux, plastiques et liquides). Leurs caractéristiques générales sont également résumées dans le tableau 1.1.

### Les cristaux inorganiques

Ils sont généralement les plus lents des scintillateurs, avec des temps de réponse de l'ordre de 500 ns à 1  $\mu$ s, bien qu'il existe deux cas particuliers de scintillateurs au bromure de lanthane ou au chlorure de lanthane, dopés au cérium ( $\text{LaBr}_3 : \text{Ce}$  ou  $\text{LaCl}_3 : \text{Ce}$ ), qui possèdent des temps de réponses rapides de l'ordre de la dizaine de nanosecondes. Parmi les cristaux couramment utilisés, on peut citer le  $\text{NaI(Tl)}$ , le  $\text{CsI(Tl)}$ , le BGO ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_2\text{O}_{12}$ ) ou encore le  $\text{BaF}_2$ . Ils ont un numéro atomique effectif élevé, ainsi qu'une densité élevée, ce qui leur donne une forte efficacité de détection aux rayonnements gamma. Les cristaux de  $\text{CsI(Tl)}$  possèdent également des capacités de PSD. Enfin, leur dernier avantage est une bonne résolution en énergie due à de très hauts rendements lumineux : près de 40000 photons/MeV pour

---

1. PSD : Pulse Shape Discrimination

un NaI(Tl). Ils ont tout de même des désavantages : ils sont chers, difficile à fabriquer en grandes tailles et leurs temps de décroissance sont importants. Mis à part les BGO et BaF<sub>2</sub>, ils sont également hygroscopiques et nécessitent par conséquent une très bonne étanchéité.

### Les gaz scintillants

Ils sont quant à eux très rapides, avec un temps de réponse variant entre 1 ns et 5 ns selon la pression du gaz. Ils sont généralement composés de mélanges gazeux (He, N, Kr, Xe) et utilisés sous pression élevée afin d'augmenter leur efficacité et de compenser la faible densité.

### Les verres scintillants

Ils sont généralement à base de silicate de lithium ou de bore, activés par du Cerium. Ils sont aussi relativement rapides avec des temps de réponse de quelques dizaines de nanosecondes et très résistants. Leur rendement lumineux est faible, typiquement 4500 photons/MeV. Lorsqu'ils sont dopés au <sup>6</sup>Li, ils permettent notamment la détection des neutrons thermiques par réaction ( $n, \alpha$ ) sur les noyaux de <sup>6</sup>Li.

### Les cristaux organiques

Parmi les scintillateurs organiques, ce sont les cristaux (anthracène, naphthalène ou stilbène) qui ont le plus haut rendement en lumière, notamment l'anthracène, utilisé comme référence, qui émet  $\sim 17400$  photons/MeV. Ils sont également rapides, avec un temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde. On peut noter également que les cristaux de stilbène possèdent des capacités de PSD. Ils ont tout de même plusieurs désavantages dus à leur structure cristalline. La réponse de ces cristaux est anisotrope. Lorsqu'une particule entre dans un cristal avec une trajectoire parallèle au plan du cristal, son dépôt d'énergie est plus faible et son parcours plus grand dans le cristal que pour les autres incidences. C'est un effet nommé channeling[49]. Cet aspect complique singulièrement leur utilisation, avec notamment des réponses en lumière qui varient beaucoup d'un détecteur à l'autre et selon l'orientation de ceux-ci. De plus, le coût de fabrication de ces cristaux est élevé car cela nécessite de faire croître des cristaux de grande taille sans défaut qui détérioreraient les propriétés optiques. Ils sont également très durs, ce qui rend aussi leur usinage difficile.

### Les plastiques

Ce type de scintillateur est très courant en physique nucléaire et les plus utilisés actuellement sont basés sur du PVT<sup>1</sup> contenant des fluorophores comme du *para*-terphényle par exemple. Ils sont également très rapides avec des temps de réponse entre 2 ns et 3 ns. Leur rendement en lumière est généralement de l'ordre de 10000 photons/MeV.

Ils présentent l'avantage d'être facilement usinables ; on peut donc les trouver sous n'importe quelle forme souhaitée. Cependant, ils ont l'inconvénient de ne pas avoir naturellement de PSD. Des travaux très récents [104, 10] ont montré des avancées dans ce domaine avec des possibilités de PSD et donné lieu à la commer-

---

1. PVT : polyvinyltoluène

cialisation de plastiques avec PSD par Eljen Technologies mais ils possèdent des rendements en lumière relativement faibles.

### Les liquides organiques

Enfin, les liquides organiques sont basés sur des solvants aromatiques. Un grand nombre de solvants est utilisé parmi lesquels on peut citer : le xylène<sup>2</sup>, le toluène<sup>3</sup>, la décaline<sup>4</sup>, le benzène ou le pseudocumène<sup>5</sup>. A ces solvants, on ajoute généralement un fluorophore primaire tel que le PPO<sup>6</sup> afin d'augmenter le rendement en lumière du scintillateur. Un colorant ou *wavelength shifter* comme le POPOP<sup>7</sup> est parfois ajouté pour modifier le spectre d'émission de la lumière de fluorescence. Ces scintillateurs ont la caractéristique d'être rapides, avec des temps de réponse de l'ordre de 2 ns à 4 ns. Ils permettent également de discriminer les particules par PSD comme nous le verrons par la suite. Il est également possible de les doper facilement avec des composés tels que le gadolinium ou du bore, souvent utilisés pour la détection des neutrons en raison de leur section efficace de capture des neutrons. Etant donné qu'il s'agit de liquide, la forme du détecteur n'est plus une limite mais leur grande volatilité implique des conteneurs étanches. Leur principal désavantage est la dégradation des performances avec les impuretés. La présence d'oxygène a par exemple un fort effet de quenching en lumière et nécessite une préparation sous atmosphère inerte et/ou un bullage à l'argon. Enfin, ces solvants organiques sont pour la plupart nocifs (irritants, toxiques, inflammables etc...).

	Type	$h\nu/\text{MeV}$	Réponse	Avantages	Inconvénients
Inorganique	cristal	$\sim 40000$	500 ns-1 $\mu\text{s}$	Z, Y( $h\nu$ )	hygroscopique
	gaz	$\sim 1000$	$\sim 1$ ns	rapidité	gaz sous pression pureté du gaz
	verre	$\sim 5000$	$\sim 10$ ns	résistance	Y( $h\nu$ )
Organique	cristal	$\sim 16000$	$\sim 1$ ns	Y( $h\nu$ ) dureté	anisotropie dureté
	plastique	$\sim 10000$	2-3 ns	fabrication	solvants
	liquide	$\sim 12000$	2-4 ns	fabrication dopage	volatilité nocivité

TABLE 1.1 – Caractéristiques générales des différents matériaux scintillants.

A l'heure actuelle, les cristaux inorganiques, dotés d'une bonne résolution en énergie et d'un grand pouvoir d'arrêt, ainsi que les plastiques, aux temps de réponse rapides et faciles à usiner, sont les plus répandus.

2. xylène : diméthylbenzène
3. toluène : méthylbenzène
4. décaline : décahydronaphtalène
5. pseudocumène : 1,2,4-triméthylbenzène
6. PPO : 2,5-diphényloxazole
7. POPOP : 1,4-bis-[2-(5-phényloxazolyl)]benzène



## 1.2 Rappels sur l'interaction rayonnement-matière

A l'origine de tout phénomène de scintillation, une particule (alpha, gamma, neutron ou fragment de fission) va interagir avec les atomes du milieu. Ces interactions vont permettre la formation d'atomes excités ou ionisés qui, par la suite, mèneront à la scintillation. Nous allons donc commencer par un rappel sur les interactions permettant une détection des rayonnements dans les scintillateurs, où nous distinguerons le cas des ions et des particules non chargées (neutrons, photons).

### 1.2.1 Les ions

Ils interagissent et déposent de l'énergie dans le milieu par interaction électromagnétique. Celle-ci peut avoir lieu avec les électrons ou les noyaux du milieu. On parle alors respectivement de *ralentissement électronique* et de *ralentissement nucléaire*. Ce dernier est cependant négligeable devant le ralentissement électronique pour des particules ayant une énergie au-delà de quelques dizaines de keV.

Le résultat de cette interaction est un transfert d'énergie continu de la particule chargée aux électrons environnants tout au long de son parcours. On y associe les notions de *pouvoir d'arrêt* et de parcours (ou *range*). Le pouvoir d'arrêt correspond à la perte d'énergie de la particule par unité de distance, et le parcours à la distance nécessaire à la particule pour déposer toute son énergie. Ces grandeurs varient en fonction des caractéristiques de la particule chargée, du milieu traversé et peuvent se calculer grâce à la formule de Bethe et Bloch écrite ci-dessous :

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{m_e c^2 \beta^2} N Z \left[ \ln \left( \frac{2m_e v^2}{I} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \quad (1.1)$$

où :

- $ze$  est la charge de la particule chargée
- $Z, N$  sont le numéro atomique et le nombre d'atomes par unité de volume du milieu
- $m_e c^2$  est la masse de l'électron
- $I$  est le potentiel d'ionisation moyen du milieu traversé
- $\beta = \frac{v}{c}$  est la vitesse relative de la particule chargée

Le dépôt d'énergie dépend donc de la charge et de la densité du milieu ainsi que de la vitesse de la particule le traversant ; plus la densité électronique du milieu est grande, plus le pouvoir d'arrêt dans ce milieu est important.

Par exemple dans le cas du toluène ( $C_7H_8$ ), nous obtenons les résultats présentés dans les figures 1.1, 1.2 et 1.3. Ces calculs sont issus du code Monte Carlo SRIM-2013<sup>1</sup> [105], dédié au transport des ions dans la matière. Ces figures représentent respectivement le parcours (en bleu) et le pouvoir d'arrêt (en rouge) de protons, d'alphas et d'un fragment de fission tel que l'étain 132, en fonction de l'énergie de la particule.

Typiquement lors de la décroissance du  $^{252}\text{Cf}$ , les alphas ayant une énergie de

---

1. The **S**topping and **R**ange of **I**ons in **M**atter

$\sim 6,118$  MeV ont un parcours de l'ordre de  $50\text{ }\mu\text{m}$ . Les fragments de fission, d'énergie variant entre 60 MeV et 120 MeV, ont un parcours compris entre  $20\text{ }\mu\text{m}$  et  $30\text{ }\mu\text{m}$ . Enfin, lors d'une utilisation de scintillateur liquide sous faisceau de neutrons, les protons de recul engendrés par les diffusions de neutrons auront un parcours allant jusqu'à plusieurs millimètres pour les plus énergétiques.

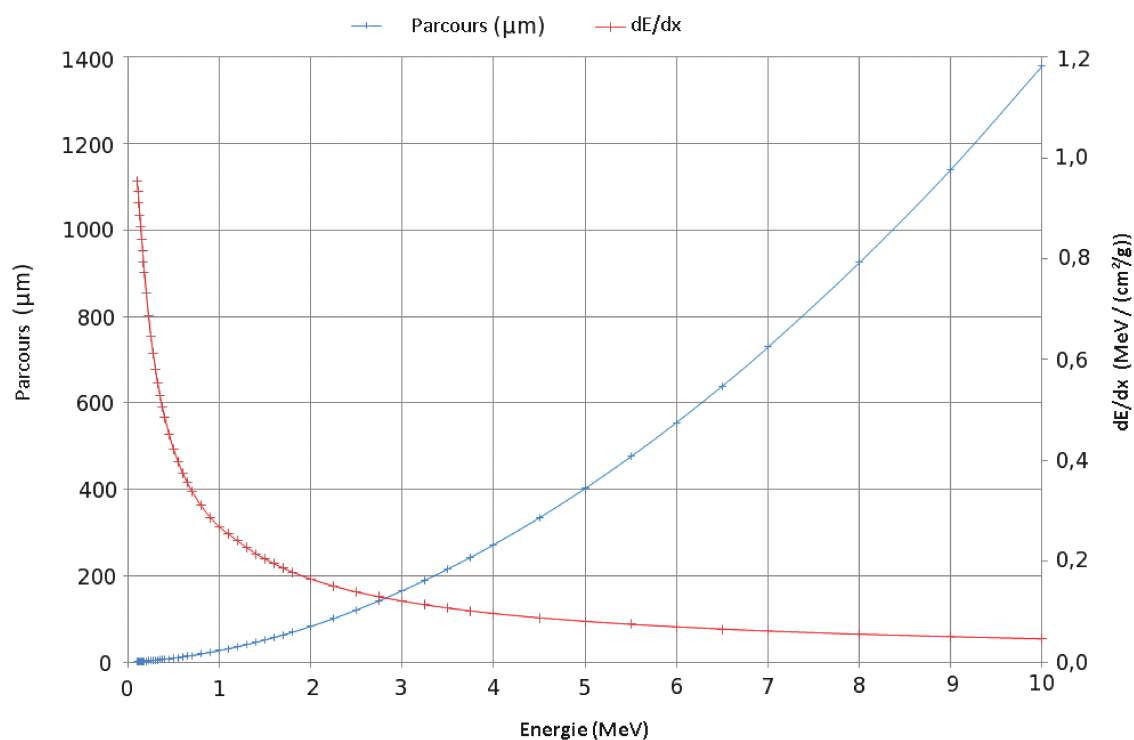


FIGURE 1.1 – Parcours et pouvoir d'arrêt des protons dans le toluène en fonction de leur énergie.

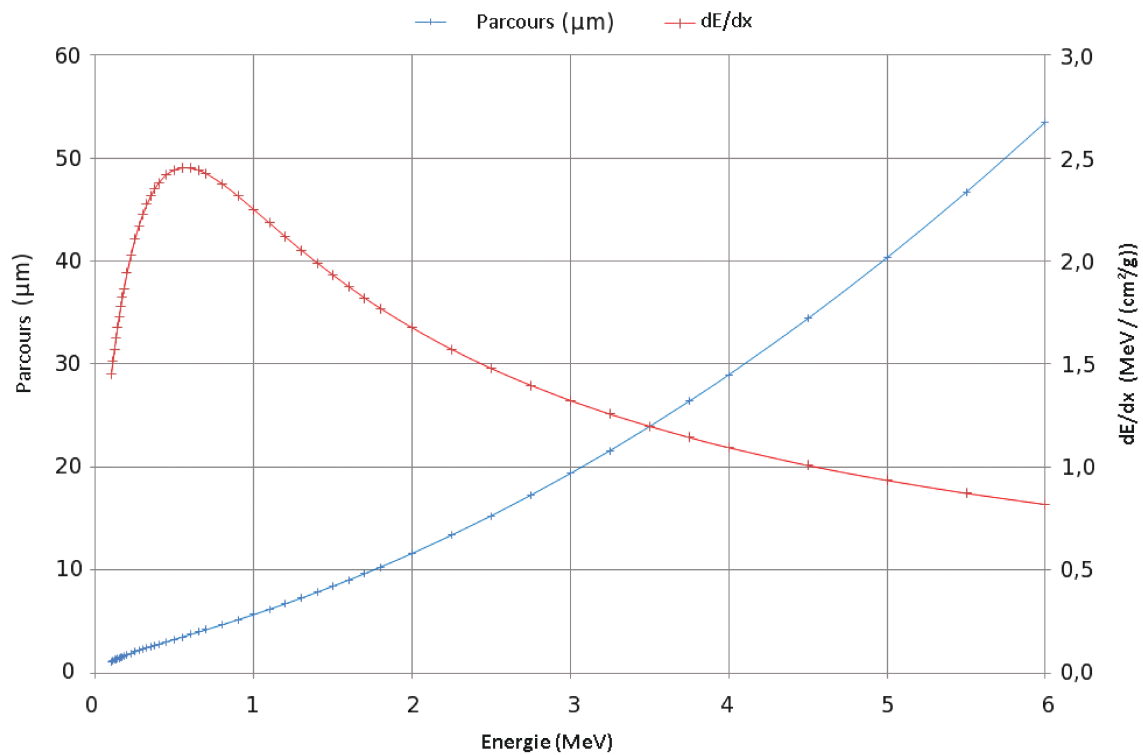


FIGURE 1.2 – Parcours et pouvoir d’arrêt des alphas dans le toluène en fonction de leur énergie.

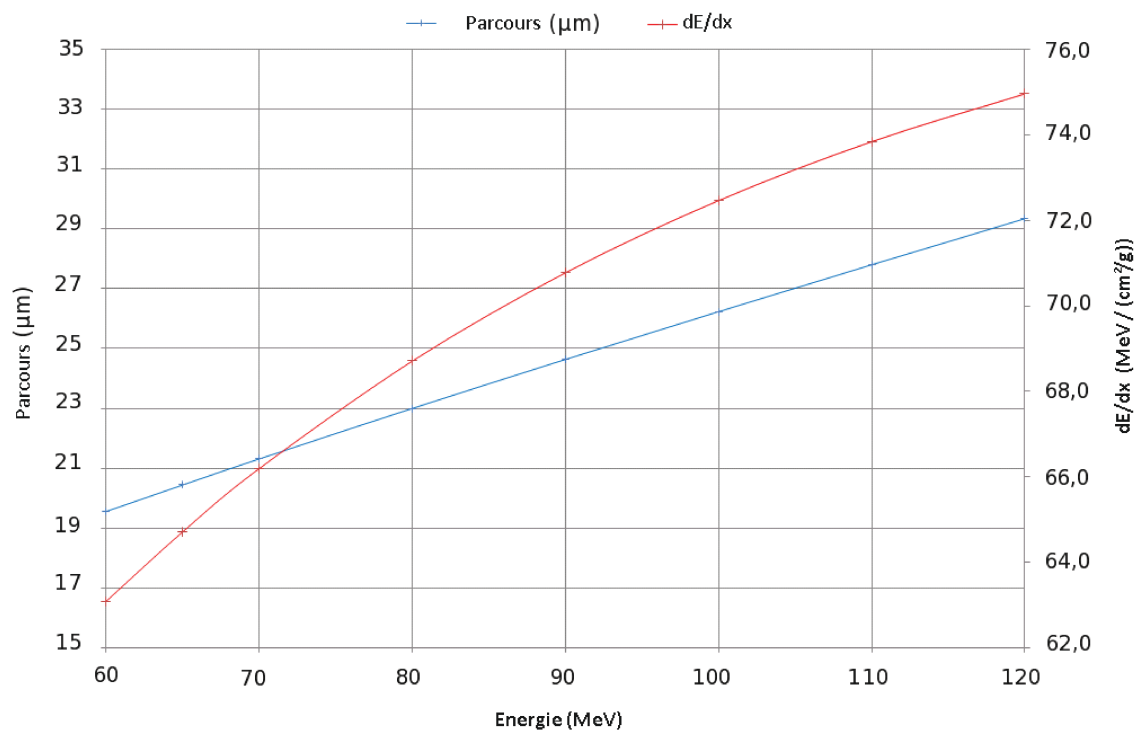


FIGURE 1.3 – Parcours et pouvoir d’arrêt de l’étain 132 dans le toluène en fonction de leur énergie.

### 1.2.2 Les neutrons

Contrairement aux particules chargées, les neutrons ne subissent pas l'interaction coulombienne. Nous n'observerons donc pas une excitation ou une ionisation directe du milieu mais indirecte. Les neutrons vont induire des réactions (capture, diffusion, fission), et produire des particules chargées secondaires telles que des noyaux de recul ainsi que donner lieu à une émission de gamma. Les diffusions et les captures sont les deux réactions principalement utilisées pour la détection des neutrons.

Pour des neutrons rapides, d'énergie supérieure à 100 keV, les diffusions élastiques sur les noyaux du milieu sont majoritaires. Lorsqu'un neutron diffuse sur un noyau de masse  $A$  (cf. figure 1.4), il transfère une partie de son énergie cinétique  $E_n$  au noyau de recul. L'énergie transférée se calcule selon son angle de diffusion  $\theta$  et selon la masse du noyau de recul :

$$E_{\text{noyau}} = \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2\theta E_n \quad (1.2)$$

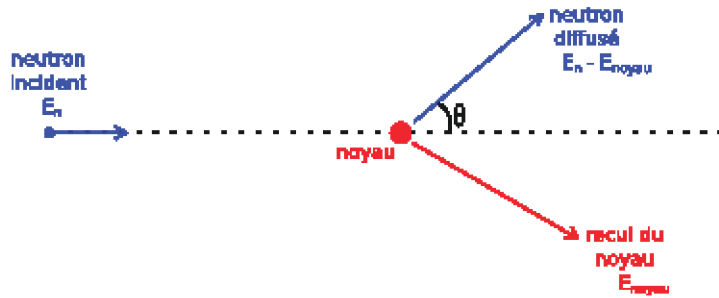


FIGURE 1.4 – Représentation schématique de la diffusion élastique d'un neutron sur un noyau

Ainsi dans le cas d'un scintillateur liquide, le neutron va diffuser majoritairement sur les noyaux d'hydrogène. Il peut alors transférer jusqu'à la totalité de son énergie à un proton. Une fois mis en mouvement, le proton de recul dépose alors son énergie dans le scintillateur comme toute particule chargée.

Pour des neutrons lents, des diffusions élastiques ont également lieu mais l'énergie transférée au noyau reste faible. Les neutrons lents peuvent également subir des captures par les noyaux du milieu. Elles s'accompagnent ensuite d'émission de rayonnements gamma ou de particules chargées par le noyau formé après capture du neutron. Les scintillateurs dédiés à la détection des neutrons lents sont couramment dopés avec des noyaux présentant une grande section efficace de capture de neutrons tels que le gadolinium 157, le bore 10 ou le lithium 7. Le gadolinium se désexcite ensuite par émission de gammas pour une énergie totale de l'ordre de 8 MeV. Les réactions de capture des neutrons par le bore ou le lithium produisent des alphas respectivement de 1,47 MeV et 2,05 MeV.

### 1.2.3 Les photons

Parmi les particules non chargées, on trouve également les photons, qui interagissent majoritairement avec les électrons du milieu. On distingue trois effets prépondérants dans différentes gammes en énergie : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires.

Lors de l'effet **photoélectrique**, le photon interagit avec un atome du milieu et disparaît. L'atome émet alors un photoélectron provenant d'une de ses couches liées. Le dépôt d'énergie du photon incident correspond alors à l'énergie du photoélectron éjecté qui s'écrit :

$$E_{phe} = h\nu - E_L \quad (1.3)$$

où  $E_L$  représente l'énergie de liaison du photo-électron dans sa couche. L'effet photoélectrique prédomine à basse énergie et dans les milieux à numéro atomique élevé.

L'effet **Compton** correspond à la diffusion d'un photon sur un électron du milieu au cours de laquelle le photon transfère une partie de son énergie à l'électron. Une fois diffusé, le photon a une énergie  $h\nu'$  dépendant de son énergie initiale  $h\nu$  et de son angle de diffusion  $\theta$  :

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_e c^2} (1 - \cos(\theta))} \quad (1.4)$$

où  $m_e c^2$  représente la masse d'un électron au repos. L'effet Compton est prédominant pour des photons de quelques centaines de kilo-électronvolts à quelques dizaines de méga-électronvolts, et cet intervalle diminue lorsque le nombre atomique du matériau traversé augmente.

Enfin, à plus haute énergie c'est une réaction à seuil qui est prépondérante : le phénomène de **création de paire**. Dès lors qu'un photon d'énergie supérieure à 1,022 MeV (soit deux fois la masse de l'électron au repos  $m_e c^2 = 511$  keV) se trouve au voisinage d'un noyau, il peut se matérialiser en une paire électron-positron. Cet effet devient prépondérant au-delà de la dizaine de mégaélectronvolts et cette limite diminue lorsque le numéro atomique du milieu traversé augmente.

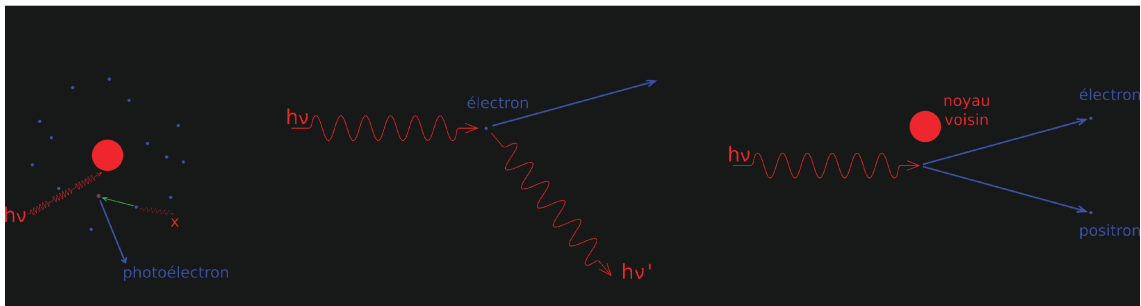


FIGURE 1.5 – Représentation des effets photoélectrique, Compton et de création de paire.

La figure 1.5 représente de manière schématique les trois effets décrits ci-dessus. La figure 1.6 représente les zones de prépondérance de chacun des trois effets en

fonction de l'énergie du photon et de la charge du milieu traversé [33]. Dans le cas d'un scintillateur liquide organique composé de carbone et d'hydrogène, le numéro atomique effectif du milieu traversé par les photons est très faible. Les gammas de fission ayant des énergies de l'ordre du kiloélectronvolt à la dizaine de mégaélectronvolts avec une énergie moyenne de 1 MeV, c'est l'effet Compton qui est majoritaire.

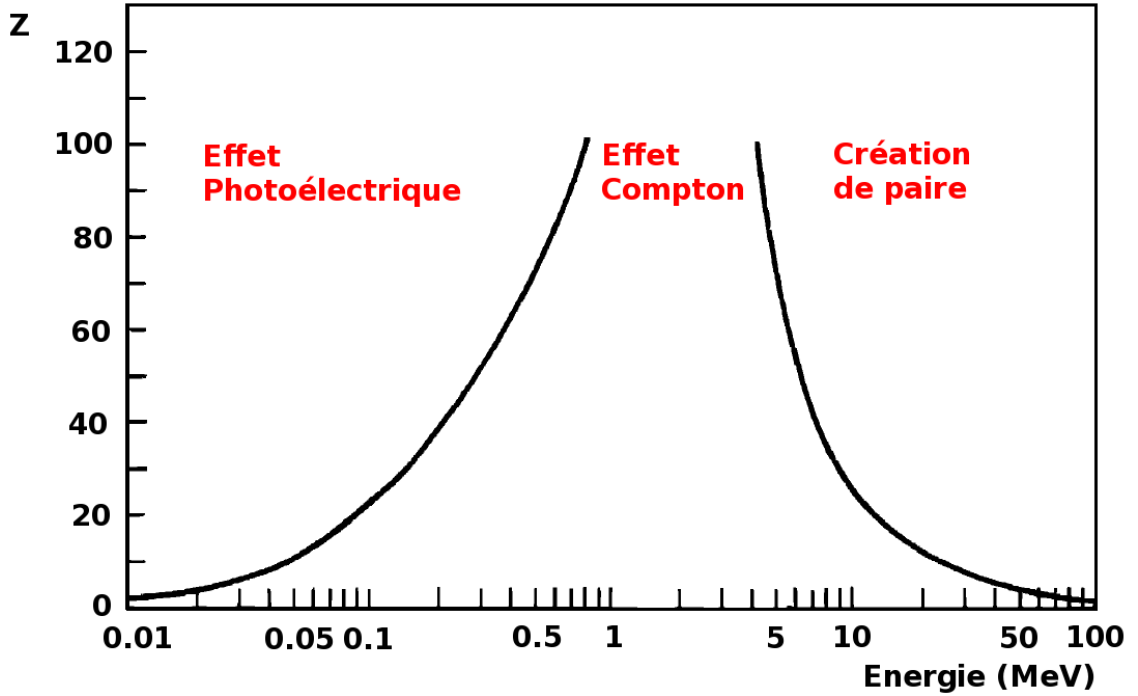


FIGURE 1.6 – Domaine de prévalence des effets photoélectrique, Compton et de création de paire en fonction de l'énergie des photons et du numéro atomique effectif du milieu traversé [33].

Pour les photons, on ne parle pas de range mais de libre parcours moyen et d'atténuation. Le coefficient d'atténuation, noté  $\mu_l$ , permet de quantifier le nombre de photons  $I$  traversant une épaisseur de matériau par rapport au nombre initial de photons  $I_0$ , qui se calcule selon :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu_l x} \quad (1.5)$$

où  $x$  est l'épaisseur traversée en centimètres. On peut en déduire un libre parcours moyen (en centimètres)

$$L = \frac{1}{\mu_l}$$

La figure 1.7 représente l'évolution du coefficient d'atténuation massique ( $\mu_l/\rho$ ) en fonction de l'énergie du photon dans un scintillateur liquide de type pseudocumène (densité  $d = 0.94$ ). Ainsi, pour des photons d'énergie comprise entre quelques kiloélectronvolts et la dizaine de méga-électronvolts, leur libre parcours moyen varie de quelques centimètres à plus d'un mètre.

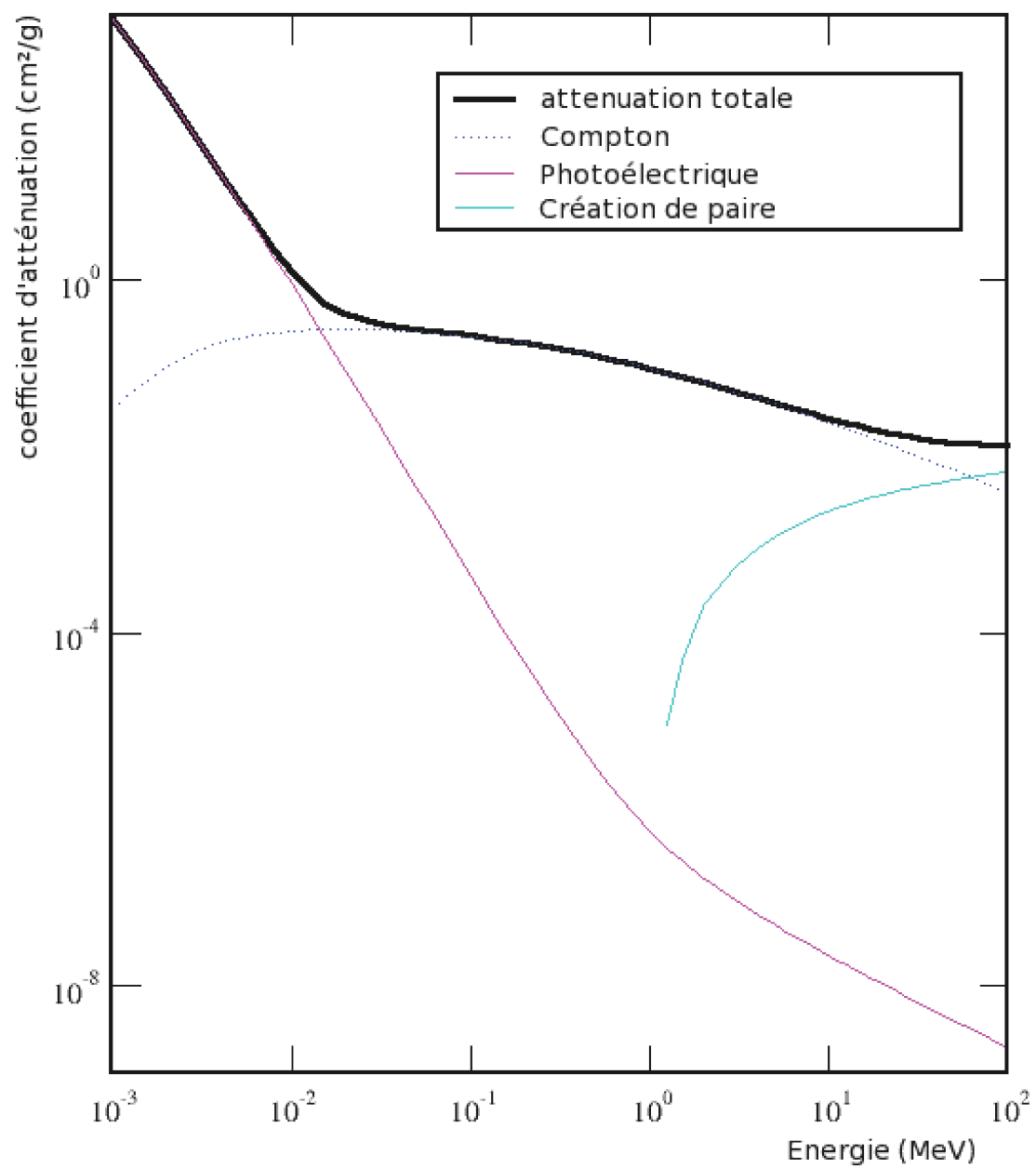


FIGURE 1.7 – Coefficient d’atténuation des photons dans le pseudocumène en fonction de l’énergie (NIST Database).

## 1.3 Mécanisme de la scintillation dans les liquides organiques

### 1.3.1 Processus primaires et secondaires

Lors du passage d'un rayonnement ionisant dans un scintillateur organique, les différentes interactions présentées dans le paragraphe précédent vont mener à la création de molécules dans des états excités. Celles-ci vont ensuite pouvoir émettre de la lumière suite à différents processus de désexcitation. On distingue ainsi deux types de processus dans les mécanismes de la scintillation organique : les processus primaires d'excitation des molécules, et les processus secondaires de désexcitation.

#### 1.3.1.1 Les processus primaires

Parmi ces processus primaires, nous distinguons les excitations et les ionisations. On parle d'excitation lorsqu'un électron change d'orbitale électronique, formant une paire électron-trou avec son atome. Ces états d'excitation peuvent être différenciés par le spin de la paire électron-trou créée. On les nomme états singulets  $S_n$  pour des états de spin  $S = 0$ , et états triplets  $T_n$  pour des états de spin  $S = 1$ . L'excitation directe d'une molécule par une particule ionisante va créer des molécules d'états excités  $S_n$  ( $n \geq 1$ ).

Dans le cas de l'ionisation d'une molécule, il y a création d'un ion et d'un électron secondaire. La recombinaison ion-électron suite à ces ionisations permet ensuite de former des états singulets et triplets, respectivement à hauteur de 25% et 75%<sup>[55]</sup>.

En utilisant les notations suivantes :  $S$  pour toute molécule du milieu,  $E$  pour un dépôt d'énergie,  $S_n$  et  $T_n$  pour des états singulets et triplets de la molécule excitée, les processus primaires peuvent être résumés par :

- des excitations :  $S + E \rightarrow S_n$
- des ionisations :  $S + E \rightarrow S^+ + e^-$
- des recombinaisons ion-électron :  $S^+ + e^- \rightarrow S_n(25\%) , T_n(75\%)$

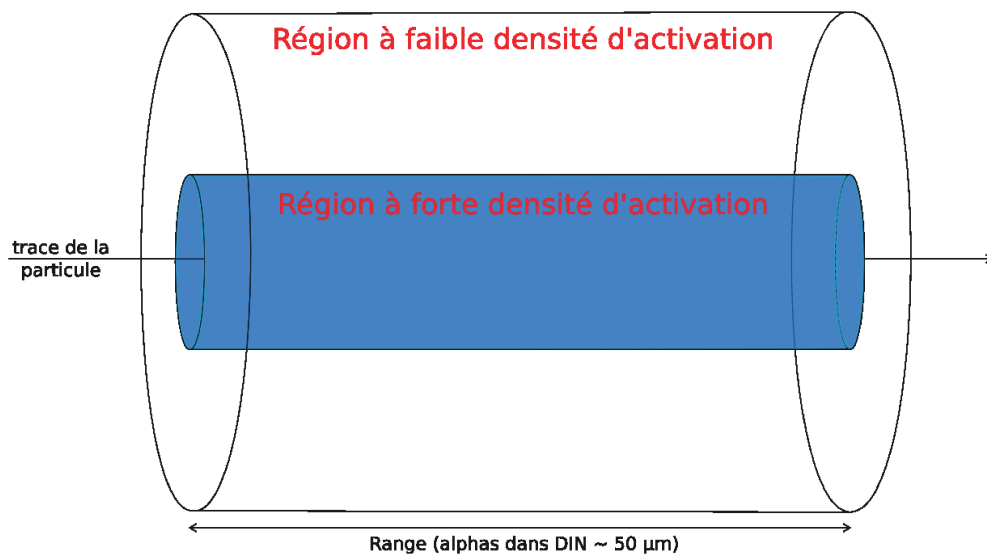


FIGURE 1.8 – Schématisation du dépôt d'énergie d'une particule dans un scintillateur liquide organique.



Ces états ainsi créés sont localisés dans deux régions le long de la trace de la particule ionisante, représentées schématiquement sur la figure 1.8. Une région à forte densité d'activation [55] est localisée autour de la trace dans un rayon de l'ordre de  $r_0 = 50 \text{ \AA}$  contenant des molécules dans des états excités  $S_n$  et une majorité d'états excités  $T_n$ . Dans cette région, les excitations directes, créant des molécules excitées d'état  $S_n$ , et les ionisations directes sont nombreuses. Les molécules excitées d'états  $S_n$  peuvent interagir entre elles ainsi qu'avec des ions du milieu et conduire à la création de nouveaux ions. La forte concentration d'ions dans cette région donne lieu à de nombreuses recombinaisons ion-électron, responsables de la formation des molécules excitées d'état triplet  $T_n$  en majorité. Enfin, suite à des processus très rapides de thermalisation et de relaxation effectués dans des temps caractéristiques de l'ordre de 100 fs, cette région contient finalement des molécules dans leur premier état excité  $T_1$  en majorité ainsi que  $S_1$ .

La seconde région, à faible densité d'activation, contient des molécules dans des états excités  $S_n$  majoritairement, ainsi que  $T_n$ . Du fait de leur faible concentration, ils n'interagissent pas comme dans la région à forte activation, et on les retrouve dans leurs premiers états excités  $S_1$  et  $T_1$  suite aux mêmes processus de thermalisation et de relaxation.

La densité d'activation de ces régions dépend de la particule en interaction, et notamment de son pouvoir d'arrêt dans le milieu. Pour des particules à faible pouvoir d'arrêt, typiquement les électrons, la densité d'activation reste faible, les excitations directes sont majoritaires, diminuant ainsi la quantité d'états triplets créés. Pour les particules à fort pouvoir d'arrêt comme les protons, les alphas ou encore les fragments de fission, la densité d'activation est plus élevée, les recombinaisons ion-électron sont favorisées et les états triplets sont créés en plus grand nombre.

A titre d'exemple, les pouvoirs d'arrêt en fonction du parcours des protons en bleu, des alphas en rouge et d'un ion lourd en vert, l'étain 132, dans du toluène sont présentés sur la figure 1.9. Leurs énergies sont respectivement de 6 MeV, 6 MeV et 100 MeV. Ces calculs sont issus du code Monte Carlo TRIM<sup>1</sup> [105]. On remarque ainsi que le pouvoir d'arrêt d'un ion lourd est jusqu'à deux ordres de grandeur plus élevé que celui d'un alpha, lui-même un ordre de grandeur au dessus de celui du proton. La quantité d'états triplets créés suite à l'interaction d'un proton sera donc plus faible que pour un alpha ou des fragments de fission.

### 1.3.1.2 Les processus secondaires

Suite à l'excitation et à l'ionisation du milieu, des molécules dans des états d'excitation  $S_1$  et  $T_1$  sont donc présentes autour de la trace de la particule ayant interagi avec le milieu. Ces molécules vont se désexciter selon différentes réactions que l'on nomme processus secondaires. Ces processus sont rassemblés dans le tableau 1.2. Certains de ces processus, en gras dans le tableau, sont dits radiatifs. Ils mènent à l'émission de photons par le milieu organique, ou luminescence, que nous classons en trois catégories : la fluorescence prompte, la phosphorescence et la fluorescence retardée. Dans notre cas, ce sont les fluorescences prompte et retardée qui nous intéressent.

---

1. **Transport of Ions in Matter**

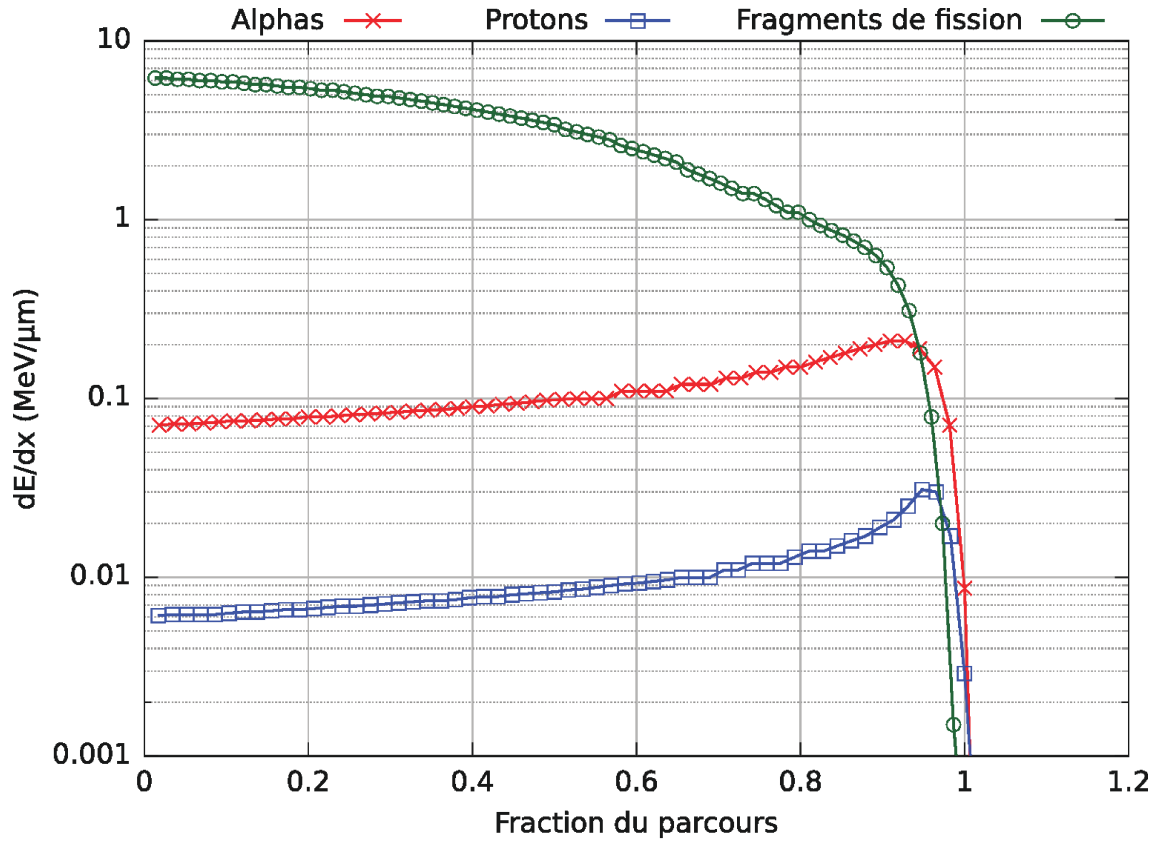


FIGURE 1.9 – Pouvoir d’arrêt des protons, alphas et ions lourds dans le toluène en fonction de leur parcours.

La fluorescence provient de la désexcitation des états excités  $S_1$  vers leur état fondamental  $S_0$ . Cette désexcitation, dans un temps de décroissance de l’ordre de la nanoseconde, est à l’origine de l’émission prompte de photons par le liquide. C’est ce que l’on appelle fluorescence prompte ou composante rapide de fluorescence.

Les molécules d’état excité  $T_1$  contribuent également aux émissions de lumière de fluorescence dans des temps plus grands, jusqu’à la centaine de nanosecondes. Comme nous l’avons vu au paragraphe précédent, les régions à haute densité d’activation contiennent majoritairement ces états  $T_1$  provenant de recombinaisons ion-électron. Du fait de leur forte concentration et les transitions de  $T_1$  à  $T_0$  étant interdites, les états  $T_1$  vont pouvoir interagir entre eux pour se désexciter. Ces interactions sont nommées annihilations  $T_1$ - $T_1$ . Elles donnent lieu à la formation d’états  $S_0$  et  $S_1$  et sont gouvernées par la diffusion des molécules dans le milieu. Les états  $S_1$  formés peuvent ensuite se désexciter en états  $S_0$  par émission de photons. C’est ce que l’on appelle fluorescence retardée ou composante lente de fluorescence dont le temps caractéristique est donné par la cinétique d’interaction des états triplets. Cette cinétique dépend du type de détecteur organique. Pour les scintillateurs liquides c’est l’agitation thermique qui conduit à l’interaction, alors que pour les cristaux elle se fait par l’intermédiaire des phonons. Enfin pour les scintillateurs plastiques, l’absence de déplacements moléculaires et la présence de fluorophore en plus faible quantité [104] diminuent fortement les couplages triplet-triplet et donc la composante lente de fluorescence.

La quantité d'états triplets étant dépendante du pouvoir ionisant de la particule en interaction, c'est grâce à cette composante lente que la PSD dans les scintillateurs organiques est possible. Elle sera détaillée dans le chapitre 2 présentant les caractéristiques de la cible active.

En parallèle, les réactions de dégradation interne, de conversion et de quenching sont en compétition avec les désexcitations citées précédemment. Ce sont des processus non radiatifs au cours desquels des états fondamentaux  $S_0$  et  $T_0$  sont formés sans émission de photons, ce qui contribue à réduire le rendement de fluorescence du milieu. Enfin, les transitions radiatives d'états  $T_1$  en états  $S_0$  conduisent également à une émission de lumière dite de phosphorescence dans des temps plus longs que la fluorescence, entre la dizaine de millisecondes et la seconde.

Etats singulets :	
<b>la fluorescence</b>	$S_1 \rightarrow S_0 + h\nu$
la conversion interne	$S_n \rightarrow S_1$
le passage intersystèmes	$S_1 \rightarrow T_1$
la dégradation interne	$S_1 \rightarrow S_0$
la dégradation réciproque	$S_1 + S_0 \rightarrow 2S_0$
le quenching	$S_1 + Q \rightarrow S_0 + Q^*$
Etats triplets :	
<b>la phosphorescence</b>	$T_1 \rightarrow S_0 + h\nu$
la dégradation interne	$T_1 \rightarrow S_0$
le quenching	$T_1 + Q \rightarrow T_0 + Q^*$
<b>les annihilations</b>	$T_1 + T_1 \rightarrow T_1 + S_0$
	$T_1 + T_1 \rightarrow S_1 + S_0$
	$T_1 + T_1 \rightarrow S_0 + S_0$

TABLE 1.2 – Processus secondaires de désexcitation des états de première excitation  $S_1$  et  $T_1$  dans les scintillateurs organiques.

### 1.3.2 Fluorescence dans les systèmes binaires et ternaires

Le mécanisme que nous venons de présenter s'applique à des milieux organiques purs ne contenant qu'une seule molécule scintillante. Dans le cas des scintillateurs liquides organiques, le système utilisé n'est pas unitaire mais binaire ou ternaire tel que décrit schématiquement sur la figure 1.11.

Les solvants aromatiques, tels que le benzène, le toluène, le xylène ou encore le pseudocumène ne sont pas d'excellents scintillateurs lors d'une utilisation pure. Les rendements de fluorescence de ces solvants, que l'on définit par le rapport du nombre de photons de fluorescence émis sur le nombre de molécules excitées, sont relativement faibles : 0,06 pour le benzène, 0,14 pour le toluène, 0,34 pour le xylène et 0,33 pour le pseudocumène. De plus, la longueur d'onde de la lumière qu'ils émettent est de l'ordre de 285 nm. Elle est située dans un domaine où les photocathodes des tubes photomultiplicateurs ont des rendements quantiques faibles, ceux-ci chutant

rapidement en-dessous de 300 nm. On observe également de l'auto-absorption du fait d'un recouvrement partiel de leurs spectres d'émission et d'absorption, piqués aux alentours de 265 nm. Enfin, les temps caractéristiques de leur émission de lumière sont de l'ordre de la trentaine de nanosecondes[45]. Cela favorise la compétition des processus non radiatifs cités dans le paragraphe précédent dont les temps caractéristiques sont du même ordre de grandeur voire plus rapides.

Afin de pallier ces problèmes, une molécule scintillante peut être ajoutée au système. On la nomme soluté primaire ou fluorophore primaire. Ces fluorophores sont choisis pour leur rendement de fluorescence élevé, leur émission de lumière rapide ainsi que la compatibilité entre le spectre de fluorescence du solvant et le spectre d'absorption du fluorophore. On peut citer par exemple le PPO, très couramment utilisé comme soluté primaire, qui a un rendement de fluorescence de 0,83, un temps de décroissance de 1,4 ns et une longueur d'onde d'émission de l'ordre de 375 nm.

L'énergie d'excitation du solvant est transférée au soluté via des processus non radiatifs ayant lieu dans des temps caractéristiques faibles de l'ordre de  $10^{-11}$  s, réduisant ainsi la compétition avec les processus secondaires non radiatifs du solvant. Un premier processus, décrit par la théorie de Förster [45] et souvent nommé FRET<sup>1</sup>, est une interaction dipôle-dipôle entre une molécule excitée du solvant dans un état  $S_1$  et une molécule du soluté dans son état fondamental  $\tilde{S}_0$ . Cette interaction à courte portée est caractérisée par un taux de transfert d'énergie dépendant du temps de décroissance  $\tau$  des états excités  $S_1$  du solvant, de la distance entre les molécules en interaction  $R$  et du rayon de Förster du soluté  $R_0$  :

$$P_{te} = \frac{1}{\tau} \cdot \left( \frac{R_0}{R} \right)^6$$

Ce dernier se calcule selon la relation suivante :

$$R_0^6 = \frac{9000 \ln 10 \kappa^2 \Phi_D}{128 \pi^5 n^4 N_A} \int_0^\infty F_D(\lambda) \varepsilon_A(\lambda) \frac{d\lambda}{\lambda^4}$$

avec :

- $\kappa$  un facteur d'orientation,
- $\Phi_D$  le rendement quantique de fluorescence du solvant pur,
- $n$  l'index de réfraction du solvant,
- $N_A = 6,022.10^{23} \text{ mol}^{-1}$  le nombre d'Avogadro,
- $F_D(\lambda)$  le spectre d'émission du solvant,
- $\varepsilon_A(\lambda)$  le spectre d'absorption du soluté,
- $\lambda$  la longueur d'onde des photons de fluorescence.

Le rayon de Förster dépend notamment du recouvrement des spectres d'émission du solvant et d'absorption du soluté, il est typiquement de l'ordre de 100 Å. Il doit être maximal afin d'assurer un transfert d'énergie optimal du solvant au soluté.

Un second processus, nommé transfert d'énergie par effet Dexter [28] ou par collision, permet à des molécules du solvant excitées dans des états singulets ou triplets de transférer leur énergie à une molécule du soluté par échange de charge (électron). Cet échange nécessite un recouvrement des orbitales atomiques des molécules du solvant et du soluté. Il a donc lieu lorsque la distance entre ces molécules est faible,

---

1. **F**örster **R**esonance **E**nergy **T**ransfert

typiquement de l'ordre de 10 Å.

Un système binaire peut également être sujet à des phénomènes d'auto-absorption et d'auto-quenching diminuant son rendement en lumière selon la concentration en soluté primaire utilisée. Par exemple, on peut remarquer que la longueur d'onde du maximum du spectre d'émission est toujours supérieure à la longueur d'onde du spectre d'absorption (cf. spectres d'émission et d'absorption du bis-MSB<sup>1</sup> sur la figure 1.10). C'est un phénomène dû à une perte d'énergie entre l'excitation et l'émission de photons de fluorescence, aussi appelé *décalage de Stokes*. Lorsque ce décalage est trop faible, le recouvrement des spectres d'émission et d'absorption du soluté devient important et un phénomène d'auto-absorption apparaît, réduisant alors le rendement en lumière du scintillateur. Le phénomène d'auto-quenching est dû à l'interaction de deux molécules du soluté donnant lieu à des processus non radiatifs ainsi qu'à une dégradation du spectre de fluorescence du soluté. Dans ce cas, une troisième molécule en faible concentration peut alors être utilisée pour pallier ce problème, nommée soluté secondaire ou *wavelength shifter* (i.e. décaleur de longueur d'onde). Typiquement, la longueur d'atténuation des photons dans un système ternaire est supérieure ou égale à 1 m alors qu'elle est inférieure ou égale à 10 cm dans un système binaire et 1 cm dans un système unitaire[66].

Le transfert d'énergie du soluté primaire au soluté secondaire est principalement d'ordre radiatif du fait des faibles concentrations employées. On peut citer par exemple le bis-MSB, le POPOP<sup>2</sup> ou bien diméthyl-POPOP<sup>3</sup>, qui ont des temps de décroissance de l'ordre de la nanoseconde et un spectre d'émission de lumière piqué autour de 420 nm. L'intérêt de ces solutés secondaires est double car, en plus de diminuer les effets d'auto-absorption et d'auto-quenching, ils permettent de décaler encore plus la longueur d'onde d'émission de la lumière de fluorescence au-dessus de 400 nm, région où le rendement quantique des photocathodes des photomultiplicateurs est le meilleur.

Par exemple, la figure 1.10 représente les spectres de fluorescence et d'absorption des différents composants d'un cocktail scintillant, mesurés dans du cyclohexane : le toluène [37], le PPO [37] et le bis-MSB [101]. Leurs spectres sont respectivement en rouge, vert et bleu, avec les spectres de fluorescence en trait plein et les spectres d'absorption en traits pointillés. On remarque un recouvrement entre les spectres de fluorescence du toluène et d'absorption du PPO entre 275 nm et 325 nm permettant un transfert de l'énergie d'excitation du toluène vers le PPO. Cette énergie d'excitation est ensuite transférée au bis-MSB du fait du recouvrement des spectres d'absorption du bis-MSB et d'émission du PPO autour de 350 nm. Enfin, le bis-MSB émet une lumière de fluorescence piquée à 425 nm avec un faible taux de recouvrement avec son spectre d'absorption.

---

1. bis-MSB : 1,4-bis(2-méthylstyryl)benzène

2. POPOP : 1,4-bis-[2-(5-phényloxazolyl)]benzène

3. diméthyl-POPOP : 1,4-bis-[2-(4-méthyl-5-phényloxazolyl)]benzène

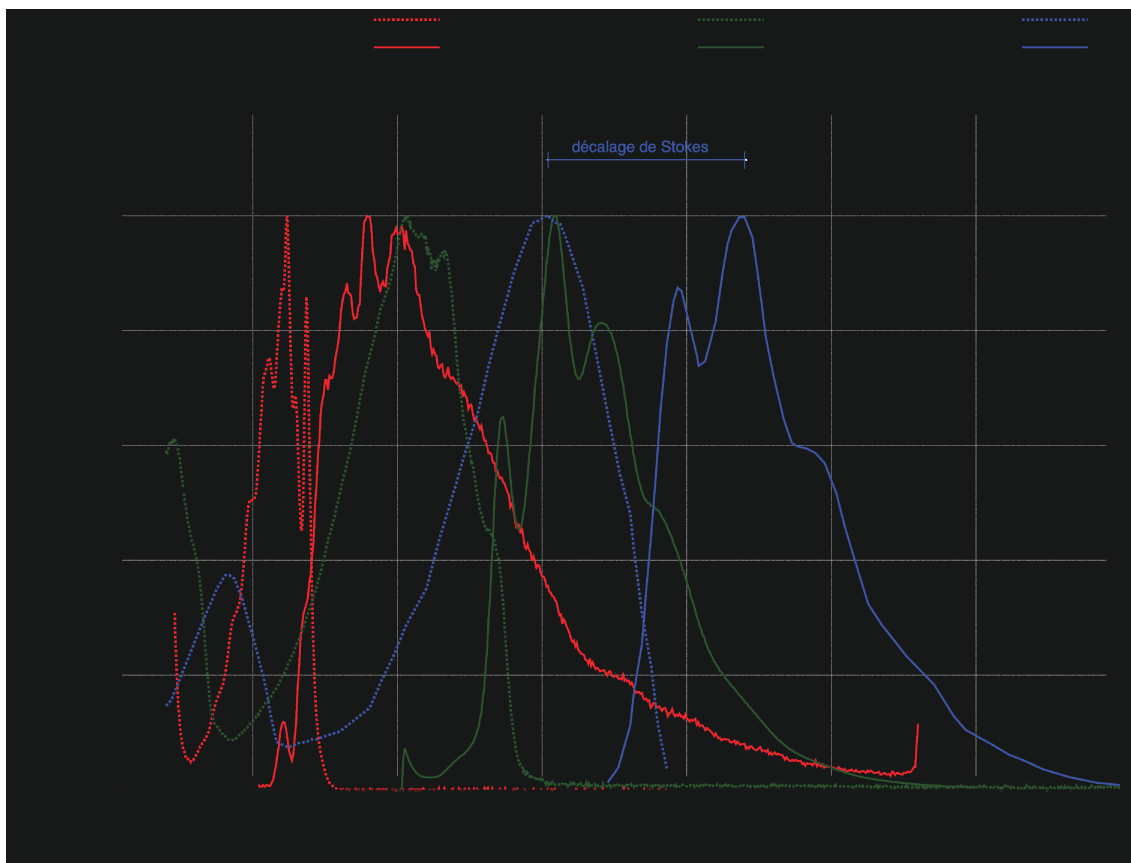


FIGURE 1.10 – Comparaison des spectres de fluorescence et d’absorption du toluène[37], PPO[37] et bis-MSB[101] mesurés dans du cyclohexane.

Pour résumer le mécanisme de scintillation dans les liquides organiques, tel que présenté sur les diagrammes de Jablonski simplifiés de la figure 1.11, suite à l’excitation et l’ionisation des molécules du solvant, des molécules sont excitées dans des états singulets et triplets. Leur énergie d’excitation est ensuite transférée par FRET et effet Dexter aux molécules du soluté primaire, ou fluorophore, dans des temps caractéristiques de l’ordre de quelques dizaines de picosecondes. Les molécules du soluté se dés excitent ensuite par émission de photons de fluorescence. Enfin, ces photons sont collectés par un photodétecteur adapté, directement dans le cas d’un système binaire, ou après absorption et ré-émission par un soluté secondaire, ou wavelength shifter, dans le cas d’un système ternaire.

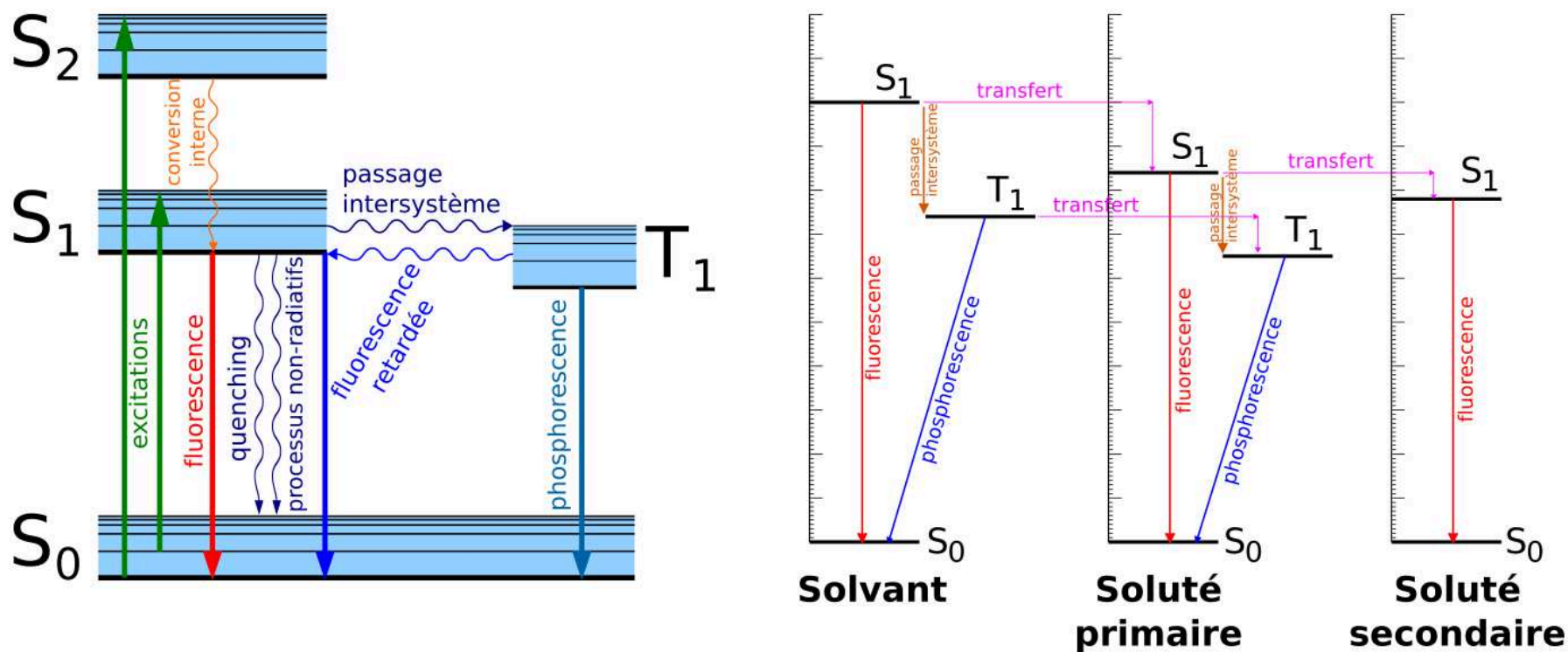


FIGURE 1.11 – Diagrammes de Jablonski simplifiés : à gauche représentant les processus d'absorption et d'émission de fluorescence dans une molécule aromatique ; à droite représentant le processus de scintillation simplifié au sein d'un cocktail scintillant à base de trois molécules.





# Chapitre 2

## Développement de la cible active scintillante

### 2.1 L'extraction liquide-liquide

L'idée originale de ce nouveau détecteur provient de la technique PERALS développée par J.W. McKivleen et W.J. McDowell [63] dans les années 1980 et utilisée de nos jours par les radiochimistes pour des analyses d'échantillons par spectrométrie alpha. Le principe est de mettre un actinide en solution dans un liquide organique scintillant grâce à la méthode de l'extraction liquide-liquide.

La préparation du volume "actif" du détecteur s'effectue à partir de deux solutions : l'une aqueuse et l'autre organique. La solution aqueuse est une solution acide contenant l'actinide que nous souhaitons extraire dans le scintillateur. La solution organique contient le cocktail scintillant, le solvant et un ou plusieurs solutés, auquel nous avons ajouté une molécule extractante. Nous avons utilisé l'HDEHP<sup>1</sup> comme molécule extractante.

Déroulement de l'extraction :

1. Dans un premier tube à essai, on effectue un mélange des composants du scintillateur et on ajoute la molécule extractante. Dans un second tube à essai, on dispose de la solution aqueuse d'actinide. Dans certains cas, selon l'actinide à extraire, le pH de la solution aqueuse doit être ajusté.
2. Les deux solutions sont alors mélangées puis agitées pendant environ 10 minutes.
3. Les deux phases sont séparées par centrifugation à 2000 tours/minute pendant environ 5 minutes.
4. Ces phases n'étant pas miscibles et la phase organique ayant une densité plus faible que l'eau en général, elle se retrouve dans la partie supérieure du tube à essai et on peut la récupérer à l'aide d'une pipette.
5. La phase organique ainsi récupérée est dégazée par un bullage à l'argon saturé en solvant afin de minimiser toute présence de dioxygène dans la phase organique.
6. La phase organique peut être transférée dans la cellule voulue. Les solvants organiques étant volatiles, il faut également sceller efficacement le dispositif

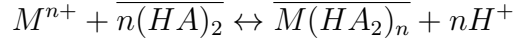
---

1. HDEHP : acide di-(2-ethylhexyl)phosphorique

avec de la colle époxy à séchage rapide.

Bien que le procédé d'extraction soit simple, certains facteurs influent sur le rendement d'extraction de l'actinide en phase organique : le volume des solutions, la concentration en actinide ou encore le pH de la solution aqueuse.

Considérons la réaction d'extraction par de l'HDEHP suivante : l'actinide étant symbolisé par le cation  $M^{n+}$  et l'HDEHP par le dimère  $\overline{n(HA)_2}$  :



A partir du pH de la solution aqueuse, de la concentration en HDEHP et de la constante d'équilibre  $K$  de la réaction, il est possible de calculer le coefficient de distribution  $D$  de l'actinide [25, 5] :

$$D = K \cdot \frac{[(HA)_2]^n}{10^{-n} \cdot pH}$$

Ce coefficient est caractéristique de la qualité d'une extraction et intervient dans le calcul du taux d'actinide récupéré dans la phase organique :

$$P = 100 \cdot \frac{D \cdot \frac{V_{org}}{V_{aq}}}{1 + D \cdot \frac{V_{org}}{V_{aq}}}$$

Ainsi, plus le coefficient de distribution est élevé, meilleur est le taux de récupération. De même, ce taux augmente aussi lorsque le rapport des volumes de solution organique sur aqueuse augmente. Une étude exhaustive sur l'extraction de différents actinides par de l'HDEHP a déjà été effectuée et permet de déterminer les intervalles de pH optimisant le taux de récupération [25]. Ces mesures ont été effectuées avec un rapport  $V_{org}/V_{aq} = 0,5$  et une concentration en extractant constants. Pour des actinides tels que le plutonium ou le thorium, la récupération est proche de 100% sur une large plage de  $pH \sim 5$  à  $pH \sim 0$ . Dans le cas du californium ainsi que de l'uranium ou de l'américium, la récupération chute sensiblement en-dessous de 70% à partir de  $pH = 2,4$ , et l'extraction n'est plus possible en dessous de  $pH = 1,3$ . La récupération est maximale pour des valeurs de  $pH \sim 3$ .

Lors des extractions que nous avons réalisées, nous nous sommes placés dans des conditions similaires avec un rapport  $V_{org}/V_{aq} = 0,5$ , un pH ajusté selon l'actinide d'après les valeurs citées ci-dessus et des concentrations en extractant de l'ordre de 0,05 mol/L à 0,1 mol/L.

## 2.2 Dispositifs

### 2.2.1 Cellules

Une fois l'extraction réalisée, nous disposons de différents systèmes de couplage à un tube photomultiplicateur. Le premier système, mis en place au début du développement de la cible active, est représenté schématiquement par la figure 2.1. Le liquide scintillant est extrait dans un tube à essai en borosilicate dont le bouchon

est scellé à la colle époxy pour éviter toute évaporation. Il est ensuite placé dans un porte-tube en aluminium adapté au diamètre du tube. Ce porte-tube comporte une cavité hémisphérique au niveau du liquide scintillant dont les parois sont peintes avec de la peinture réfléchissante Eljen EJ-520 et contenant de l'huile de silicone de qualité optique. Cette cavité est fermée par un tube photomultiplicateur. La liaison optique entre le tube à essai et le tube photomultiplicateur est assurée par l'huile de silicone qui permet d'avoir un indice optique identique au borosilicate du tube à essai et du tube photomultiplicateur, et très proche de celui du liquide scintillant. Un tel système permet de réaliser des caractérisations rapides avec de simples tubes à essais.

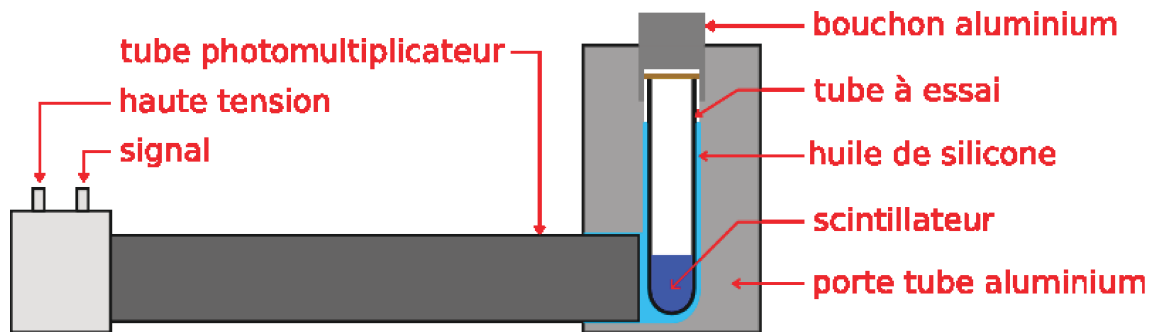


FIGURE 2.1 – Représentation schématique du système de comptage en tube à essai.

Pour tester les cocktails préparés dans les conditions d'une expérience de physique nucléaire, des cellules cylindriques de différentes tailles ont été réalisées. Le principe est représenté sur la figure 2.2. La cellule est composée d'une cuve cylindrique en aluminium d'épaisseur 1 mm, dotée de deux trous de remplissage, sur laquelle un hublot en quartz est collé grâce à de la colle époxy de qualité optique (Eljen EJ-500). Le fond de la cuve Aluminium peut être ou non recouvert d'une peinture réfléchissante. Nous adaptons ensuite le diamètre et l'épaisseur de liquide scintillant selon les besoins de l'expérience.

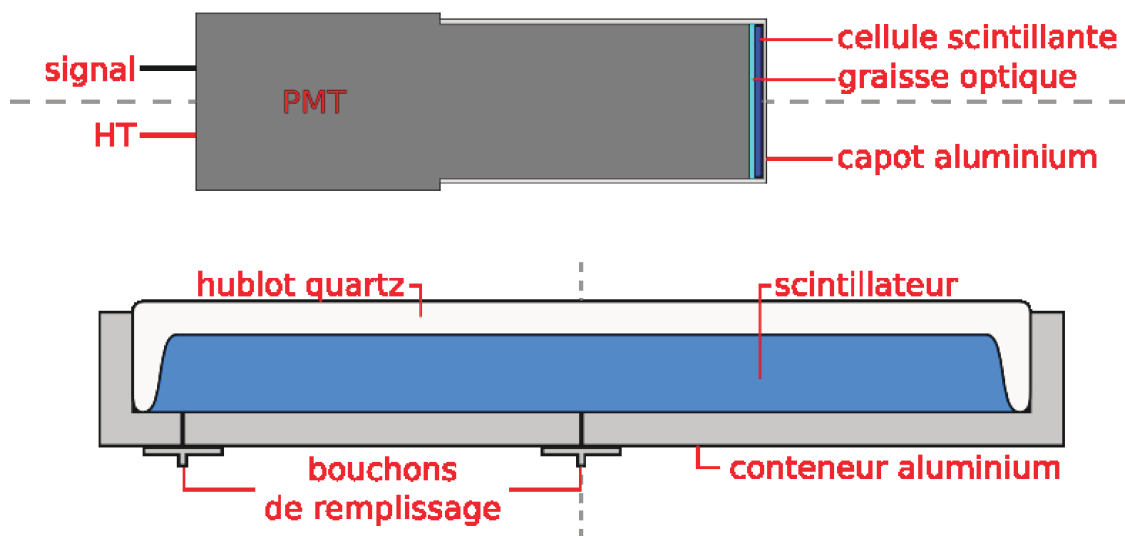


FIGURE 2.2 – Représentation schématique du système de comptage en cellule cylindrique.

### 2.2.2 Guides optiques

Afin de ne pas endommager les tubes photomultiplicateurs lors d'utilisations de la cible active scintillante sous faisceau de neutrons, nous avons dû utiliser des guides optiques pour coupler les cellules scintillantes aux tubes photomultiplicateurs. Afin de transmettre un maximum de lumière de fluorescence par le guide optique, nous avons testé différents systèmes : un endoscope (faisceau de fibres optiques), des tubes : peints avec de la peinture réfléchissante ou contenant différents papiers réfléchissants : Mylar aluminisé, 3M<sup>TM</sup>Solar Mirror Film 1100 et 3M<sup>TM</sup>Specular Film DF2000MA. Ces deux derniers papiers sont à base de polymères multicouches et possèdent, selon les données des constructeurs, une réflectance supérieure à 90% pour des photons de longueur d'onde comprise entre 400 nm et 775 nm et d'angle d'incidence compris entre 0° et 80°. L'angle d'incidence est défini comme l'angle entre la trajectoire du photon et la normale au papier réfléchissant. Différentes longueurs et diamètres de tubes ont également été testés.

Les mesures de transmission en lumière ont été réalisées avec une cellule scintillante contenant du <sup>252</sup>Cf. Nous avons mesuré la position du pic alpha dans le spectre en énergie déposée dans la cible active pour chaque couplage optique et l'avons rapporté à la position du pic alpha pour une cible active sans guide de lumière, avec un couplage grâce à de la graisse optique. Ces mesures sont rassemblées dans le tableau 2.1.

Diamètre (mm)	Configuration du guide optique		Transmission Pic alpha
	Longueur (cm)	Réflecteur	
8	10	Al nu	34%
8	10	Al + 5 mm peinture	21%
8	10	Al + 10 mm peinture	16%
10	30	DF2000MA	14%
12	39	DF2000MA	22%
20	10	Solar Mirror Film 1100	31%
20	10	DF2000MA	53%
20	60	DF2000MA	37%
20	60	Mylar aluminisé	6%
20	30+30 (coude 20°)	DF2000MA	30%

TABLE 2.1 – Mesures de transmission en lumière pour différents guides optiques.

Ces mesures montrent que la meilleure transmission en lumière est obtenue avec le papier 3M<sup>TM</sup>Specular Film DF2000MA. Nous mesurons une transmission de 53% et 37% pour des tubes de diamètre 20 mm et respectivement de longueur 10 cm et 60 cm. Le papier 3M<sup>TM</sup>Solar Mirror Film 1100 n'atteint que 31% pour un tube de diamètre 20 mm et longueur 10 cm. La transmission grâce à du Mylar aluminisé dans un tube de diamètre 20 mm et longueur 60 cm est très faible : 6%. Pour tous les guides optiques, nous avons également observé une dégradation de la résolution en énergie des alphas, avec une résolution de 25% pour le tube coudé de 60 cm au DF2000MA, ainsi qu'une dégradation de la PSD.

Nous observons aussi une augmentation de la transmission avec le diamètre du guide optique. Cela peut s'expliquer, comme le montre le schéma simplifié du trajet de photons sortant d'une cellule scintillante dans deux guides optiques de diamètres différents représenté sur la figure 2.3. Pour un même angle d'incidence, une augmentation du diamètre permet de réduire le nombre de réflexions qu'ils subissent par les photons pour un même angle d'incidence. Par ailleurs, une simulation Monte Carlo avec le code MCNPX 2.6 nous a permis d'estimer l'angle d'incidence des photons sortant d'une cellule scintillante cylindrique de diamètre 2,54 cm et d'épaisseur 5 cm dotée d'un hublot en quartz d'épaisseur 2 mm. Les photons atteignent le papier réfléchissant avec un angle d'incidence faible, leur distribution est piquée à  $13^\circ$ . Ils seront donc sujets à de nombreuses réflexions et nous avons tout intérêt à utiliser un guide optique de diamètre plus important que celui de la cellule scintillante.

Les guides optiques que nous utilisons par la suite sont tous fabriqués avec des feuilles DF2000MA placées à l'intérieur de tubes en titane rectilignes ou coudés.

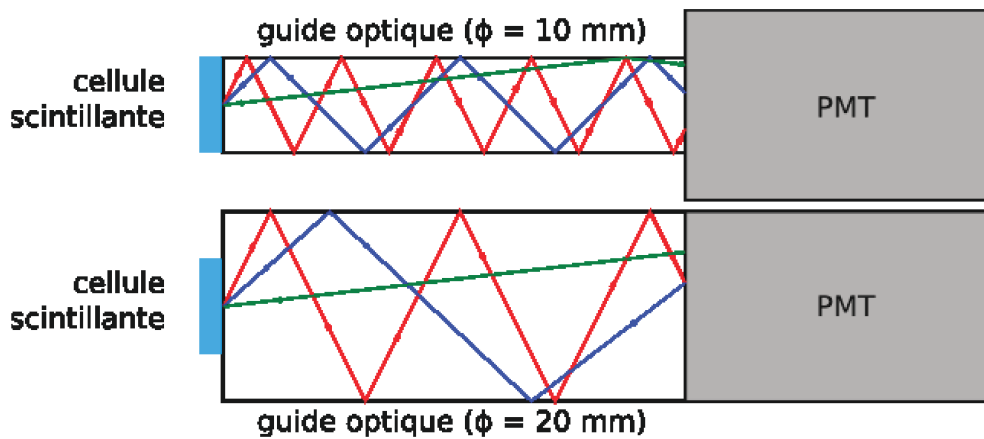


FIGURE 2.3 – Représentation schématique de la réflexion de photons pour différents angles incidents provenant de la cellule scintillante dans deux guides optiques de diamètre différent.

## 2.3 Efficacité de détection

Comme nous l'avons vu au début de cette partie, l'une des principales caractéristiques de la cible active scintillante est son efficacité de détection très élevée pour les fragments de fission comme pour les alphas. Dans un liquide organique scintillant, les fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$ , ayant une énergie comprise entre 70 MeV et 100 MeV, ont un parcours variant entre 20  $\mu\text{m}$  et 30  $\mu\text{m}$ , et les alphas de 6, 118 MeV un parcours de 50  $\mu\text{m}$ . Le tableau 2.2 donne les parcours moyens dans un scintillateur de type DIN<sup>1</sup> d'un alpha de 6, 118 MeV et de différents fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$  issus de calculs Monte Carlo avec le code SRIM-2008 [105].

Particule	Energie (MeV)	Parcours moyens( $\mu\text{m}$ )
$\alpha$	6,118	49,0
$^{109}\text{Ru}$	105	25,0
$^{143}\text{Ba}$	80	22,3
$^{103}\text{Nb}$	107	27,0
$^{149}\text{Ce}$	73,5	21,3
$^{114}\text{Pd}$	103	24,7
$^{138}\text{Xe}$	84,9	20,0
$^{99}\text{Zr}$	107	27,3
$^{153}\text{Nd}$	68,8	20,0
$^{121}\text{Cd}$	101	24,7
$^{131}\text{Sb}$	93,3	24,0
$^{115}\text{Ag}$	106	24,4
$^{137}\text{Cs}$	86,4	23,0

TABLE 2.2 – Parcours moyens calculés par le code SRIM-2008 pour des alphas ainsi que des fragments de fission issus de la décroissance du  $^{252}\text{Cf}$ .

Compte-tenu de ces parcours moyens, les pertes de fragments de fission ou d'alphas sont dues à des effets de bord tels que présentés schématiquement sur la figure 2.4. Lorsque la fission ou la décroissance alpha a lieu à une distance du bord de la cellule inférieure au parcours des particules émises, volume nommé peau, ces dernières peuvent sortir sans déposer toute leur énergie. Le rapport du volume de cette peau au volume total de la cellule est dimensionnant pour l'efficacité, et majore le taux de pertes. En effet, tout événement dans la peau ne conduit pas systématiquement à un dépôt partiel et n'entraîne pas forcément une perte de comptage. On peut noter par ailleurs que les fragments de fission étant émis dans des sens opposés le long de l'axe de fission, seules les fissions ayant lieu proche du bord de la cellule et dont l'axe de fission est tangent à la paroi conduiront à la perte des deux fragments. Les autres cas conduiront à la perte de l'un des deux fragments et donc à la détection complète du fragment complémentaire. Par conséquent, les géométries à angles saillants ou à forte courbure occasionnent des pertes de comptage plus élevées.

Afin de quantifier exactement ces effets, nous avons réalisé des simulations Monte

1. DIN : di-isopropylnaphtalène

Carlo avec le code MCNPX 2.6 [53], avec pour objectif également d'optimiser les géométries.

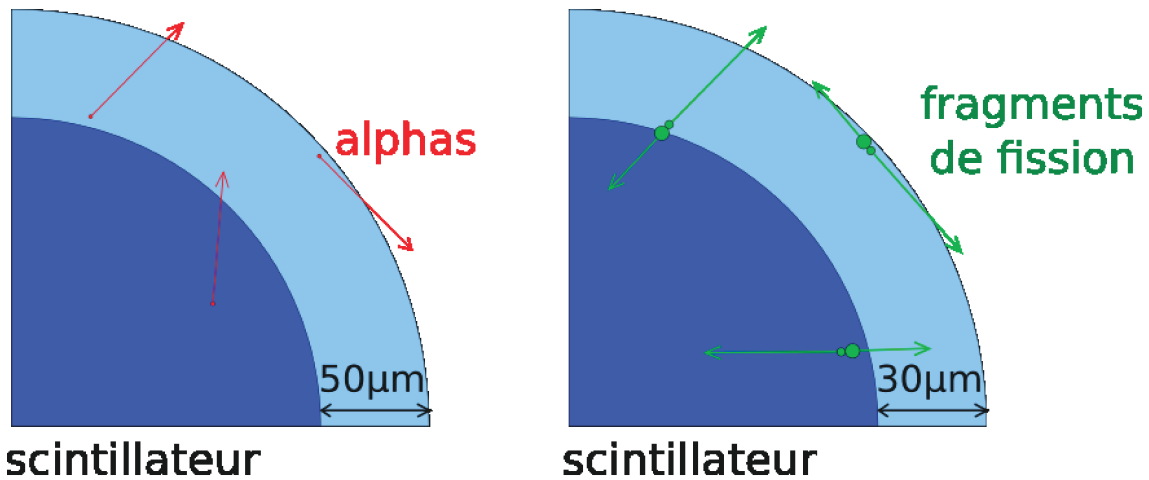


FIGURE 2.4 – Représentation schématique des effets de bord dans le scintillateur pour des alphas et des fragments de fission. La partie bleu claire représente l'épaisseur de peau.

Les figures 2.5 et 2.6 représentent respectivement une géométrie cylindrique et en tube à essai (aussi nommée PERALS) de volumes  $1 \text{ cm}^3$  dont nous avons étudié les efficacités de détection. La géométrie en tube à essai a un rayon  $0,375 \text{ cm}$  et une hauteur  $2,4 \text{ cm}$ . La géométrie cylindrique est une cellule de rayon  $1,26 \text{ cm}$  et de hauteur  $2 \text{ mm}$ . Nous avons également étudié les efficacités pour une géométrie hémisphérique de rayon  $0,78 \text{ cm}$ , et sphérique de rayon  $0,62 \text{ cm}$ . Ainsi, pour ces cellules de même volume total, la géométrie sphérique présente la meilleure efficacité car le rapport du volume de la peau sur le volume total est minimisé :

$$\left(\frac{V_{\text{peau}}}{V_{\text{tot}}}\right)_{\text{cylindre}} > \left(\frac{V_{\text{peau}}}{V_{\text{tot}}}\right)_{\text{PERALS}} > \left(\frac{V_{\text{peau}}}{V_{\text{tot}}}\right)_{\text{hémisphère}} > \left(\frac{V_{\text{peau}}}{V_{\text{tot}}}\right)_{\text{sphère}}$$

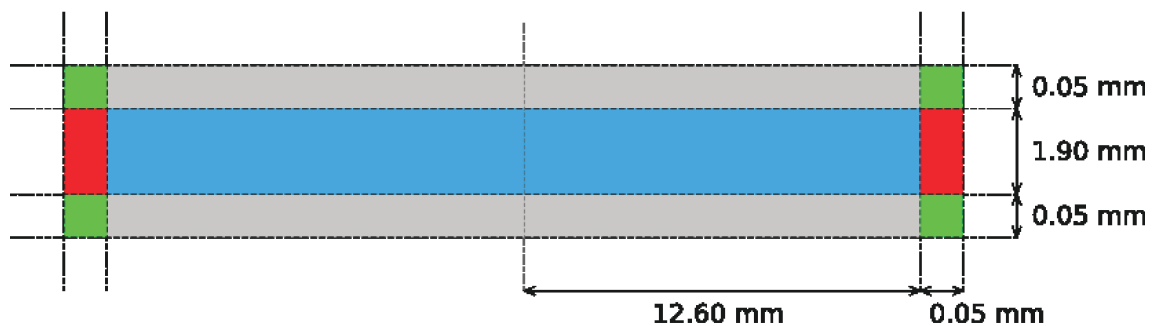


FIGURE 2.5 – Représentation schématique de la géométrie cylindrique utilisée pour les simulations. Les parties grises, vertes et rouges représentent la peau où peuvent avoir lieu des pertes de comptage. La partie bleu représente la quantité de liquide où aucune perte de comptage n'a lieu.

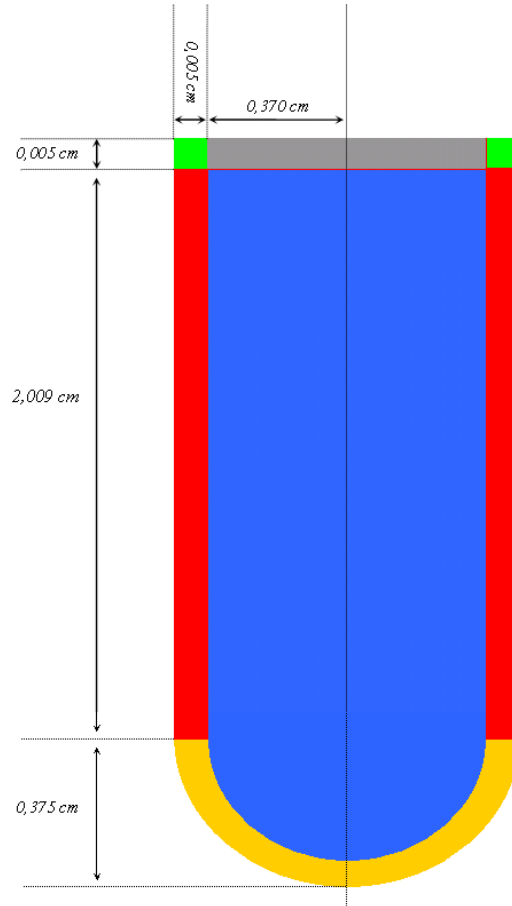


FIGURE 2.6 – Représentation schématique de la géométrie en tube à essai utilisée pour les simulations. Les parties rouge, jaune et grise et vertes représentent la peau où peuvent avoir lieu des pertes de comptage. La partie bleu représente la quantité de liquide où aucune perte de comptage n'a lieu.

### 2.3.1 Efficacité de détection des alphas

La figure 2.7 représente les spectres de dépôt d'énergie des alphas provenant de la décroissance du  $^{252}\text{Cf}$  pour les quatre géométries différentes : la géométrie cylindrique en rouge, tube à essai en bleu, hémisphérique en vert et sphérique en orange. Le pic à 6,118 MeV correspond à un dépôt total de l'énergie par l'alpha dans le scintillateur. Les événements à plus basse énergie proviennent de dépôts partiels d'énergie des alphas. Conformément à nos prévisions, les pertes sont plus importantes pour les géométries cylindriques que tube à essai, ainsi que respectivement pour les géométries hémisphériques ou sphériques.

Expérimentalement, nous pouvons estimer un seuil de détection de l'ordre de 4,1 MeV. Pour les quatre géométries cylindrique, tube à essai, hémisphérique et sphérique, les pertes d'alphas avec un seuil de 4,1 MeV sont respectivement de 1,15%, 0,60%, 0,57% et 0,48%.



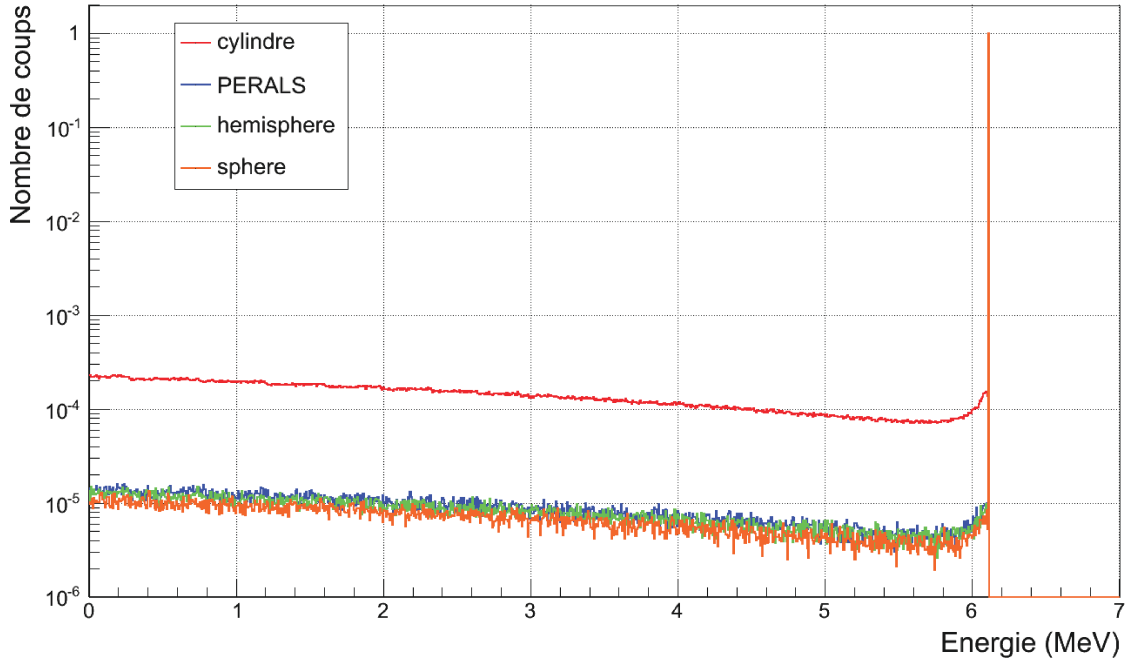


FIGURE 2.7 – Spectres de dépôt d'énergie d'un alpha de 6,118 MeV dans quatre cellules cylindrique, tube à essai, hémisphérique et sphérique de volume 1 cm<sup>3</sup> contenant du DIN.

### 2.3.2 Efficacité de détection des fragments de fission

Dans les cas des fragments de fission, nous avons scindé la simulation en deux étapes. Le code MCNPX 2.6 ne permettant pas de transporter les deux fragments issus d'une fission au sein d'une même simulation, nous avons dans un premier temps simulé indépendamment le transport d'un fragment lourd et d'un fragment léger. Nous avons choisi une paire parmi les fragments les plus produits dans la fission spontanée du <sup>252</sup>Cf : le <sup>143</sup>Ba et le <sup>109</sup>Ru respectivement produits à hauteur de 4,40% et 2,99% [31]. Chaque simulation nous fournit un fichier de suivi de la particule transportée tout au long de son parcours, nommé PTRAC. Nous avons donc accès à différentes informations telles que la position et le vecteur directeur de la particule générée, mais aussi à l'énergie qu'elle dépose dans une cellule donnée.

Ces informations nous permettent de réaliser la seconde étape du processus qui consiste à appairer un fragment lourd et son complémentaire léger selon certains critères d'appariement afin de reconstruire un spectre de dépôt d'énergie. Nous avons choisi une distance maximale entre les deux fragments de 1 μm et un angle maximum entre leur vecteurs directeurs de 2,4°. Ces critères d'appariement étant dimensionnant en terme de temps de calcul, ils imposent un échantillonnage des simulations et permettent d'obtenir un bon compromis entre le temps de calcul et la qualité de l'appariement.

La figure 2.8 représente les spectres de dépôt d'énergie pour les quatre géométries citées précédemment pour la paire de fragments <sup>109</sup>Ru/<sup>143</sup>Ba. Le pic à 188 MeV correspond à un dépôt total de l'énergie cinétique des deux fragments. On distingue ensuite trois zones délimitées par les flèches. La zone notée A correspond à des évè-

nements où les deux fragments s'échappent et ne déposent qu'une partie de leur énergie. La zone notée B correspond à un premier palier situé entre environ 90 MeV et 100 MeV. Dans ce cas, l'énergie déposée par les deux fragments est supérieure à l'énergie cinétique du fragment lourd mais inférieure à celle du fragment léger. On retrouve ainsi dans cette zone des événements liés soit à l'échappement des deux fragments donnant lieu à un dépôt partiel de chacun des deux fragments, soit à l'échappement du fragment léger qui dépose une partie de son énergie et la détection complète du fragment lourd. Enfin, la zone notée C se situe au-delà de l'énergie cinétique du fragment léger donc tous les cas de figure sont possibles avec les échappements de l'un des deux ou bien des deux fragments. Avec un seuil expérimental de 87 MeV, les pertes pour les géométries cylindriques, tube à essai, hémisphériques et sphériques sont respectivement de  $1,1 \cdot 10^{-4}$ ,  $3,0 \cdot 10^{-6}$ ,  $1,3 \cdot 10^{-6}$  et  $2,2 \cdot 10^{-7}$  (%).

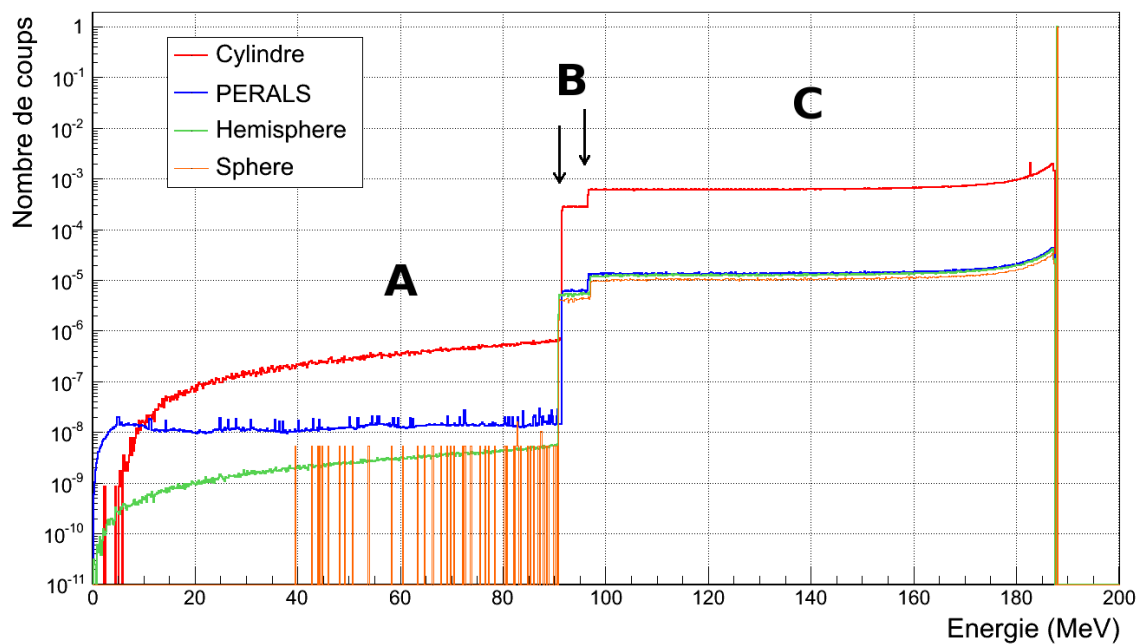


FIGURE 2.8 – Spectres de dépôt d'énergie de la paire de fragments de fission  $^{109}\text{Ru}/^{143}\text{Ba}$  dans quatre cellules : cylindrique, tube à essai, hémisphérique et sphérique de volume  $1 \text{ cm}^3$  contenant du DIN.

Les efficacités de détection des fragments de fission et des alphas, ainsi que le rapport du volume de peau au volume total sont rassemblés dans le tableau 2.3.

Géométrie	$V_{\text{peau}}/V_{\text{tot}}$	Pertes alpha	Pertes fragments
sphère	0,0240	0,48%	$2,2 \cdot 10^{-7}\%$
hémisphère	0,0286	0,57%	$1,3 \cdot 10^{-6}\%$
tube à essai	0,0301	0,60%	$3,0 \cdot 10^{-6}\%$
cylindre	0,0577	1,15%	$1,1 \cdot 10^{-4}\%$

TABLE 2.3 – Efficacités de détection des fragments de fission (seuil à 87 MeV), des alphas (seuil à 4,1 MeV) et rapport du volume de peau au volume total pour les différentes géométries simulées.

### 2.3.2.1 Influence de l'asymétrie de la fission

Les simulations précédentes ont été effectuées avec une paire de fragments  $^{109}\text{Ru}/^{143}\text{Ba}$ , dont le rapport des masses  $\frac{M_{Ru}}{M_{Ba}}$  vaut 0,762. Il s'agit là d'une fission asymétrique du  $^{252}\text{Cf}$ . Afin de connaître l'influence du partitionnement en masse sur ces résultats, nous avons également simulé la détection d'autres paires de fragments issus de la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  [31] telles que :  $^{99}\text{Zr}/^{153}\text{Nd}$ ,  $^{114}\text{Pd}/^{138}\text{Xe}$ ,  $^{103}\text{Nb}/^{149}\text{Ce}$ ,  $^{121}\text{Cd}/^{131}\text{Sb}$  et  $^{115}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ , pour des rapports de masse allant de 0,647 à 0,924.

La figure 2.9 représente les pertes de comptage par fission en fonction du rapport des masses des fragments. On remarque que les pertes restent relativement constantes, avec une moyenne de  $5,65 \cdot 10^{-6}$  pertes sur toute la plage en rapport des masses. Les variations autour de la valeur moyenne ne montrent pas d'évolution en fonction de l'asymétrie et sont inférieures à 5%. L'asymétrie de la fission n'influe donc pas sur l'efficacité de détection de la cible active scintillante.

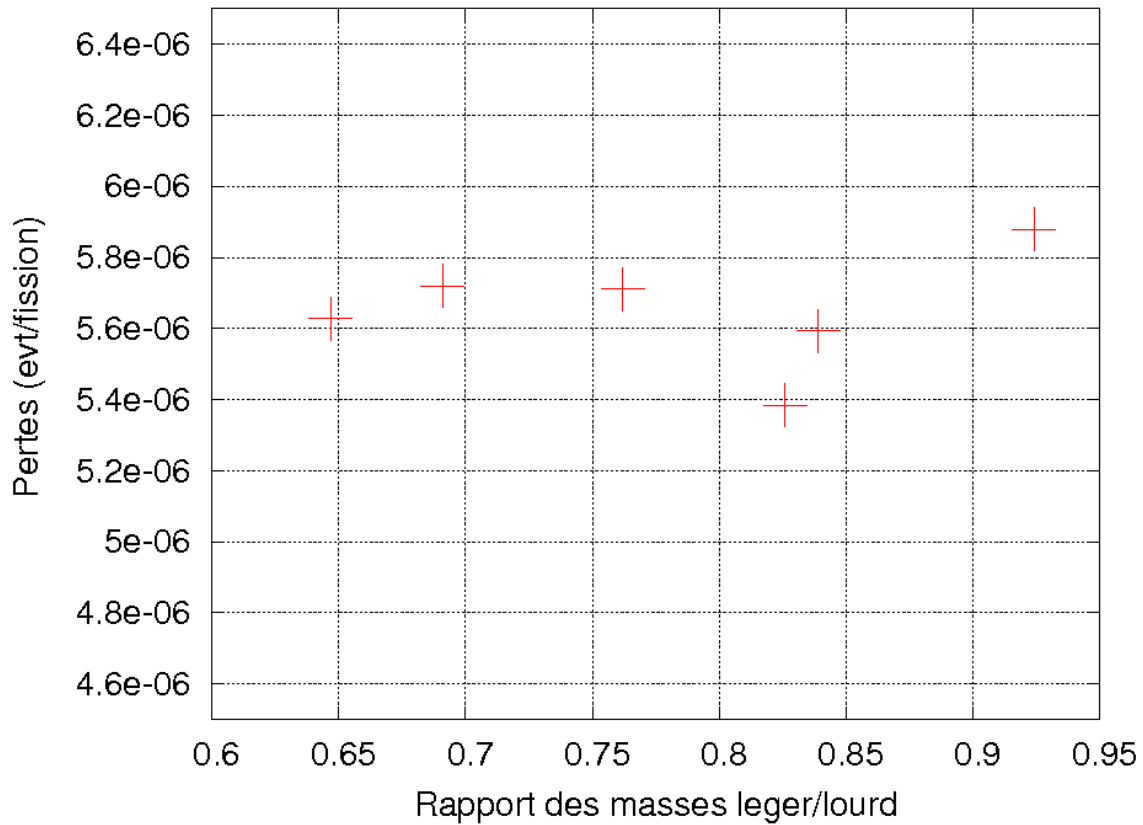


FIGURE 2.9 – Evolution des pertes de comptage en fonction de l'asymétrie de la fission pour une géométrie cylindrique de rayon 3,75 mm et d'épaisseur 2,26 cm contenant du DIN.

### 2.3.2.2 Systématique de l'efficacité de détection des fragments de fission pour une cellule cylindrique

Dans le cadre de mesures avec la cible active scintillante, nous pouvons utiliser des cellules cylindriques de différentes épaisseurs et de différents diamètres adaptés aux besoins de l'expérience. Afin de s'affranchir des simulations pour connaître

l'efficacité de détection de chaque cellule que nous pourrions utiliser, nous avons dû réaliser une systématique de l'efficacité de détection en fonction du rayon de la cellule ainsi que de son épaisseur. Des simulations sur trois régions d'une cellule cylindrique ont été effectuées (cf. figure 2.5) : la base du cylindre (en gris), la paroi (en rouge) et la jonction (en vert) ; le tout représentant une peau d'épaisseur  $50\text{ }\mu\text{m}$  où les fragments peuvent s'échapper. Plusieurs simulations ont été réalisées pour chaque région avec des cylindres de rayon variant de  $0,1\text{ mm}$  à  $50\text{ mm}$ . Nous obtenons une systématique des pertes en fonction du rayon  $r$  en centimètres pour chaque type de peau dont l'ajustement vaut :

$$\begin{aligned} P_b(r) &= 1,48831.10^{-5} & (\%) \\ P_p(r) &= 1,48831.10^{-5} + 6,7036.10^{-4}.e^{-0,62137.r} & (\%) \\ P_j(r) &= 0,648262 - 6,89316.10^{-6}.r + 7,14568.10^{-2}.e^{-0,599737.r} & (\%) \end{aligned} \quad (2.1)$$

On peut ensuite normaliser chaque contribution par rapport au volume total de la cellule. Pour des peaux d'épaisseur  $e = 50\text{ }\mu\text{m}$  dans une cellule cylindrique de hauteur  $h$  et de rayon  $r$ , leurs volumes valent :

$$\begin{aligned} V_b(r, h) &= 2\pi e(r - e)^2 \\ V_p(r, h) &= \pi h(r^2 - (r - e)^2) \\ V_j(r, h) &= 2\pi e(r^2 - (r - e)^2) \\ V_c(r, h) &= \pi(h - 2e)(r - e)^2 \end{aligned} \quad (2.2)$$

et les pertes totales se calculent simplement selon :

$$P_{\text{tot}}(r, h) = \sum_{i=b,p,j,c} \frac{P_i(r)V_i(r, h)}{V_{\text{tot}}(r, h)} \quad (2.3)$$

La figure 2.10 représente ces pertes en fonction du rayon du cylindre et pour différentes épaisseurs de  $0,25\text{ mm}$  à  $50\text{ mm}$ . Les pertes diminuent dès lors que l'épaisseur ou le rayon de la cellule augmentent. Elles restent néanmoins très faibles même pour de très petits volumes.

### 2.3.3 Conclusion

Pour une cellule cylindrique de  $3,5\text{ mL}$ , d'épaisseur  $5,0\text{ mm}$  et de rayon  $15\text{ mm}$ , les pertes totales en fission et en alpha, avec des seuils de détection respectivement à  $87\text{ MeV}$  et  $4,1\text{ MeV}$ , sont de  $9,2.10^{-5}\%$  et  $0,96\%$ .

Les incertitudes sur ces résultats peuvent provenir du partitionnement des masses à la fission et du pouvoir d'arrêt des fragments dans le milieu. Le code MCNPX 2.6 utilise des tables de pouvoir d'arrêt des ions lourds en fonction de leur énergie que nous avons ajustées grâce au code SRIM-2008 [105]. Leur incertitude est inférieure à  $5\%$ , soit une variation maximale de  $1,5\text{ }\mu\text{m}$  sur le parcours des fragments de fission. Par ailleurs, les résultats précédents sur l'asymétrie de la fission montrent une variation des pertes de comptage inférieure à  $5\%$  par rapport à leur moyenne pour différentes paires de fragments de fission dont les parcours varient entre  $20,0\text{ }\mu\text{m}$  et  $27,3\text{ }\mu\text{m}$ . On peut donc considérer que l'incertitude relative sur nos calculs est de

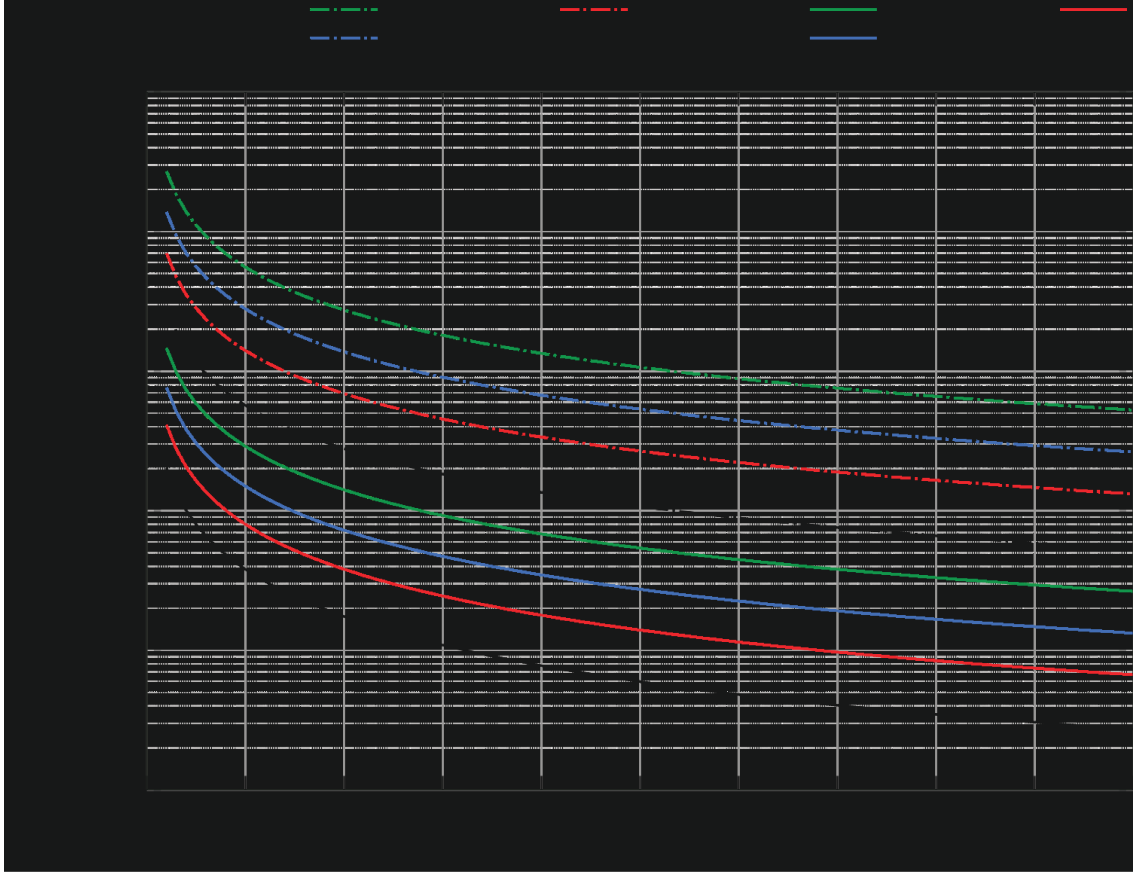


FIGURE 2.10 – Evolution des pertes totales de comptage des fissions en fonction du rayon et de l'épaisseur d'une cellule cylindrique contenant du DIN.

l'ordre de 5%, cette valeur étant majorante.

Les pertes de comptage en fission et en alpha pour cette cellule de 3,5 mL valent donc respectivement :

$$\begin{aligned} P_{\text{FF}} &= (9,2 \pm 0,5) \cdot 10^{-5}\% \\ P_{\alpha} &= (0,96 \pm 0,05)\% \end{aligned} \quad (2.4)$$

Les conditions de l'expérience influent également sur ces pertes de comptage. Dans un environnement très irradiant ou sous haut flux de neutrons, de forts taux de comptages peuvent saturer l'acquisition de données et causer des pertes de comptage. Nous pouvons alors être amenés à augmenter le seuil de détection des fissions, augmentant ainsi les pertes de comptage. La figure 2.11 représente l'évolution des pertes en fonction du seuil de détection de la fission pour la cellule de 3,5 mL citée précédemment.

Les pertes augmentent rapidement avec le seuil de détection. Elles peuvent atteindre 1,58% ( $\pm 0,16$ ) avec un seuil de détection à 158 MeV (seuil correspondant à la résolution en énergie sur la mesure de la fission détaillée au paragraphe 2.6). Il est donc important d'utiliser la cible active scintillante dans des conditions optimales permettant d'utiliser un seuil faible de l'ordre de 87 MeV.

La cible active scintillante nous permet donc de mesurer précisément le nombre de fissions et de décroissances alpha de l'actinide en solution. Les taux mesurés

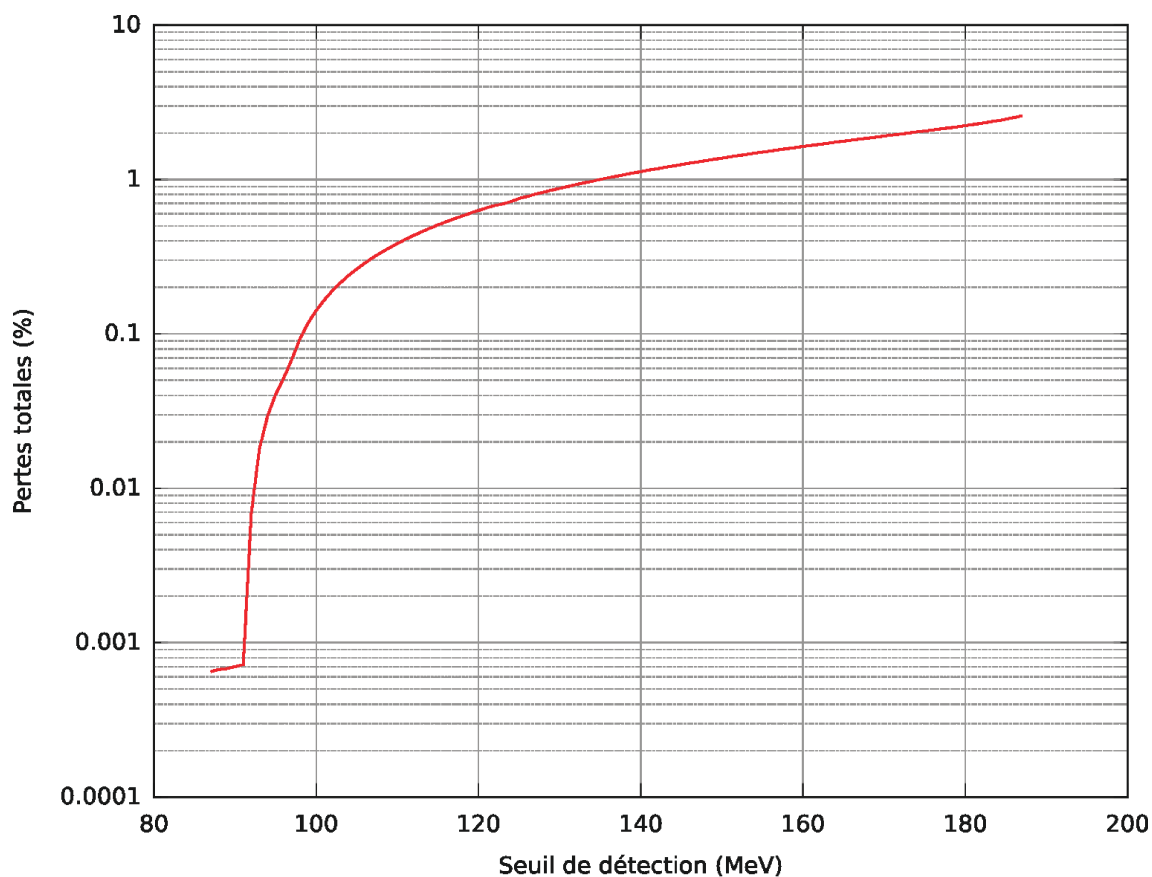


FIGURE 2.11 – Evolution du taux de pertes de comptage en fonction du seuil de détection de la fission pour une cellule cylindrique d'épaisseur 5,0 mm et de rayon 15 mm.

peuvent être ensuite corrigés avec une grande précision. Nous pouvons ainsi réaliser des pesées nucléaires précises grâce à la mesure des décroissances alpha et compter les fissions avec une très grande précision. Comme tout scintillateur organique, la cible active scintillante permet aussi la mesure des neutrons et potentiellement de leur flux grâce à une bonne PSD. Dans un même volume "actif", nous pouvons donc effectuer la mesure de la masse d'actinide en solution, du nombre de fissions et potentiellement du flux de neutrons afin d'obtenir une mesure de section efficace de fission précise.

## 2.4 Distorsion du spectre de neutrons induisant la fission dans la cible active scintillante

Nous venons de voir que nous pouvons atteindre une très bonne précision avec une cellule cylindrique d'épaisseur 5,0 mm et de rayon 15 mm. Cependant, les scintillateurs organiques sont très riches en hydrogène et lors de mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons, les neutrons peuvent perdre de l'énergie dans le détecteur avant d'induire une fission. Or, l'énergie du neutron induisant une fission est mesurée par temps de vol entre une cible de production de neutrons et le temps à partir duquel a lieu la fission. Cette mesure ne prend pas en compte la perte d'énergie du neutron due aux diffusions qu'il peut avoir subi avant la fission et la section efficace de fission mesurée peut être ainsi surestimée. C'est ce que l'on appelle la distorsion du spectre de neutrons induisant la fission.

Nous avons effectué des simulations Monte Carlo à l'aide du code MCNPX 2.6 afin d'estimer le taux de distorsion. Ce dernier est défini, pour un faisceau de neutrons d'énergie  $E_0$ , comme le rapport du nombre de fissions induites par des neutrons d'énergie inférieure à  $E_0$  sur le nombre total de fission. Différentes simulations avec des neutrons d'énergies comprises entre 1 MeV et 20 MeV ainsi que différentes tailles et compositions de cibles actives scintillantes ont été réalisées. La géométrie utilisée est un pavé de hauteur et largeur de scintillateur constants de 5 cm. Sa profondeur varie entre 1 mm et 10 mm. Le scintillateur, du DIN dopé à l'uranium 235, est contenu dans une enveloppe d'épaisseur variant entre 1 mm et 10 mm. Elle peut être composée d'aluminium, de quartz, d'acier inoxydable ou bien d'acrylique.

Un faisceau unidirectionnel de neutrons mono-énergétiques est envoyé sur la cible active scintillante. Pour chaque géométrie simulée, nous traçons ensuite un spectre en énergie des neutrons ayant induit une fission dans le cocktail scintillant tel que ceux présentés sur la figure 2.12. Le spectre de gauche a été calculé pour une cellule de cocktail scintillant de 2 mm de profondeur contenue dans une enveloppe d'aluminium d'épaisseur 1 mm. Celui de droite a été calculé pour une cellule de cocktail scintillant de 10 mm de profondeur contenue dans une enveloppe d'aluminium d'épaisseur 1 mm. On observe respectivement des taux de distorsion de 15,1% et 44,8%.

Nous avons également simulé différents matériaux et épaisseurs pour l'enveloppe de la cellule scintillante. Les taux de distorsion calculés en fonction du matériau et de son épaisseur sont présentés sur la figure 2.13. La courbe rouge représente l'aluminium, la verte du quartz, la bleue de l'acier inoxydable et la courbe orange de l'acrylique. La profondeur de liquide scintillant est fixée à 1 mm et les neutrons ont une énergie incidente de 1 MeV. On remarque que la distorsion du spectre augmente avec l'épaisseur de matériau utilisé mais que l'aluminium permet de minimiser la distorsion avec un taux d'environ 11,8% pour une épaisseur de 1 mm.

Enfin, l'évolution du taux de distorsion pour une cellule en aluminium d'épaisseur 1 mm en fonction de l'épaisseur du liquide scintillant est représentée sur figure 2.14. L'énergie incidente des neutrons vaut 1 MeV pour la courbe rouge, 5 MeV pour la courbe verte, 10 MeV pour la courbe bleue et 20 MeV pour la courbe orange. L'épaisseur de liquide a une influence importante sur la distorsion du spectre de neutrons. Pour des neutrons d'énergie 1 MeV, on observe un taux de distorsion de

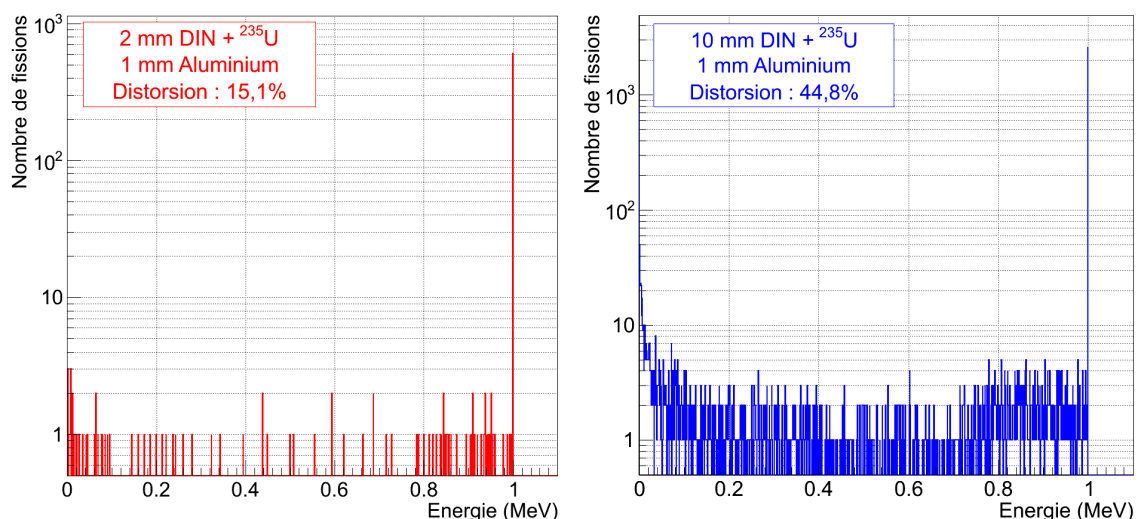


FIGURE 2.12 – Spectres en énergie simulés pour des neutrons d’énergie incidente 1 MeV ayant induit une fission dans la cible active scintillante.

11,8% pour 1 mm de liquide et jusqu’à 44,8% pour 10 mm de liquide. On peut noter également lorsque l’énergie du neutron augmente, la section efficace de diffusion du neutron sur le matériau diminue et donc que le taux de distorsion diminue également. Pour une épaisseur de liquide de 1 mm, les taux de distorsion pour des neutrons de 5 MeV, 10 MeV et 20 MeV sont respectivement de 7,5%, 3,2% et 2,5%.

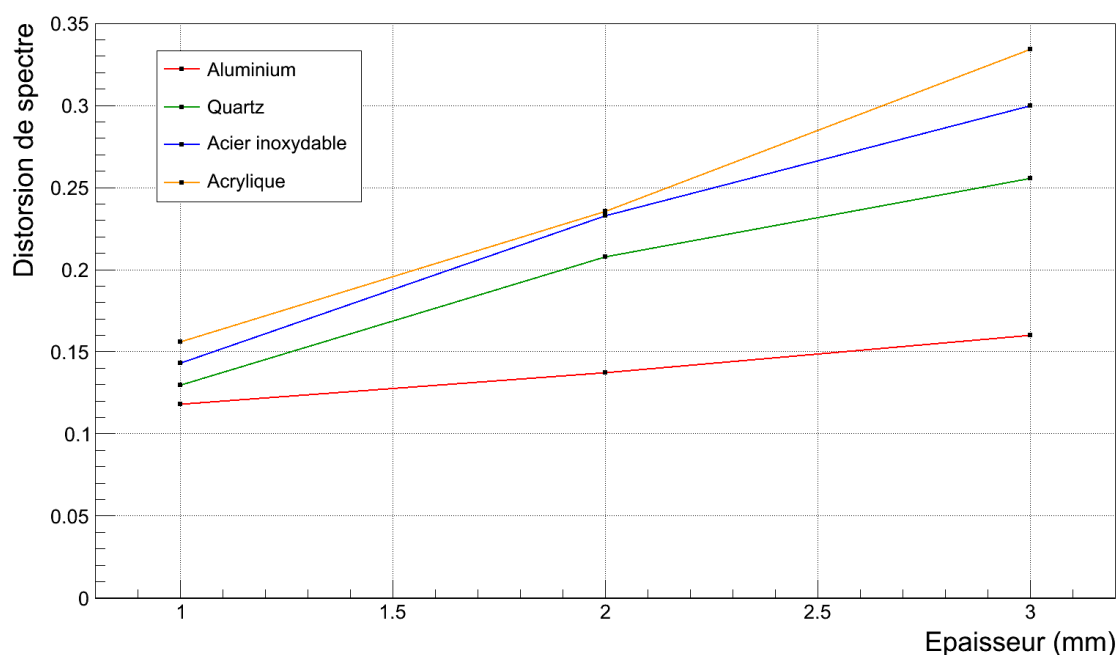


FIGURE 2.13 – Taux de distorsion simulé du spectre de neutrons en fonction de l’épaisseur de différentes cellules en aluminium, en quartz, en acier inoxydable et en acrylique, pour des neutrons incidents d’énergie 1 MeV. L’épaisseur de liquide scintillant est fixée à 1 mm.

Afin d’optimiser les mesures de sections efficaces de fission induites par neutrons, nous devons minimiser les épaisseurs de matière traversées par les neutrons. Pour



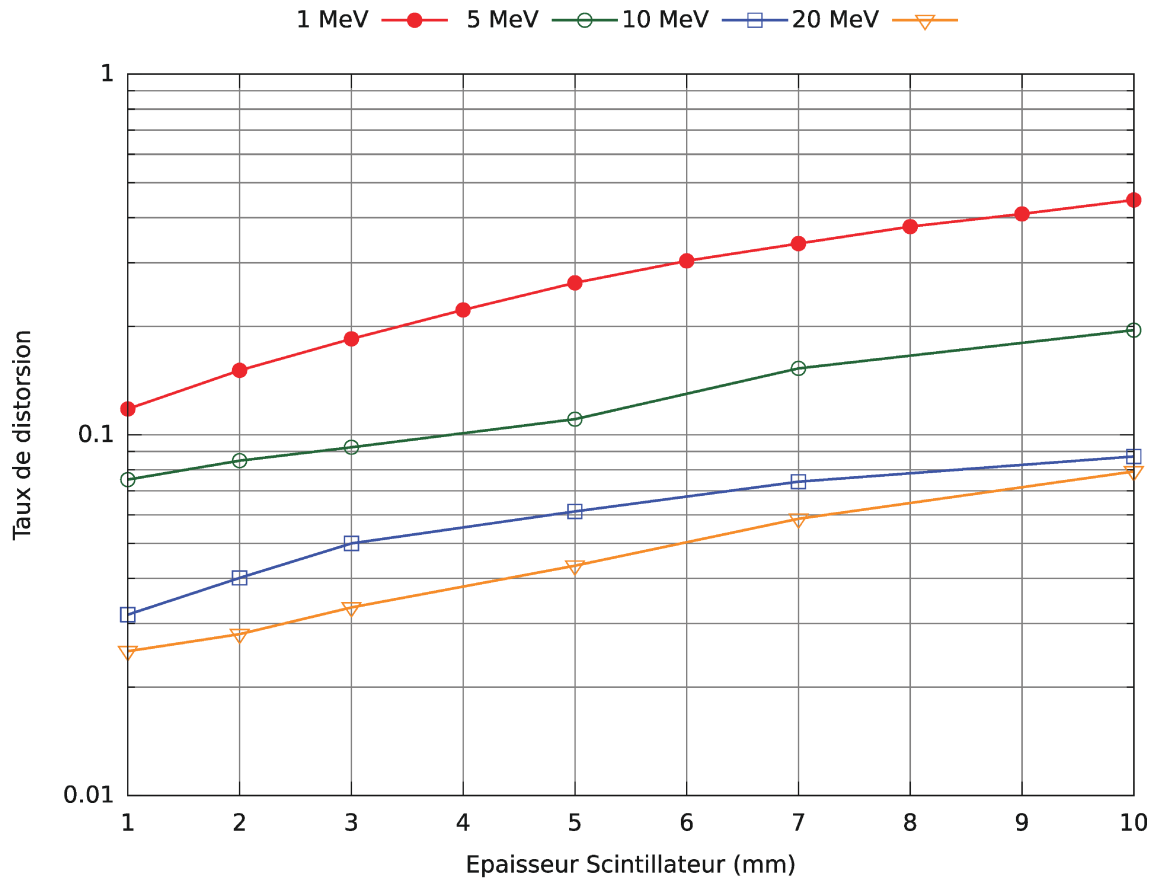


FIGURE 2.14 – Taux de distorsion simulé du spectre de neutrons dans une cellule en aluminium d'épaisseur 1 mm en fonction de l'épaisseur de liquide scintillant. L'énergie incidente des neutrons est de 1 MeV pour la courbe rouge, 5 MeV pour la courbe verte, 10 MeV pour la courbe bleue et 20 MeV pour la courbe orange.

l'enveloppe de la cible active, nous préférons de l'aluminium d'épaisseur idéalement inférieure ou égale à 1 mm ainsi que des volumes de cocktail scintillant faibles sous forme de cellules cylindriques de faible épaisseur inférieure ou égale à 1 mm afin d'obtenir un taux de distorsion inférieur à 11,8% sur une gamme en énergie de 1 MeV à 20 MeV.

## 2.5 Discrimination des évènements dans la cible active scintillante

### 2.5.1 Principe de la discrimination de forme du signal

Comme présenté dans le chapitre 1, différentes particules en interaction avec le scintillateur vont donner lieu à des émissions de lumière dont les composantes lente et rapide diffèrent. La figure 2.15 représente les signaux moyens de fluorescence mesurés pour des évènements de type fission, alpha et gamma dans une cible active scintillante à base de EJ-309 (cocktail scintillant disponible dans le commerce) dopée au  $^{252}\text{Cf}$ .

On remarque bien ici une composante lente des gammas moins élevée que celles des alphas et des fragments de fission due à une plus faible quantité d'ionisations créées dans le liquide. Pour les fragments de fission, leur pouvoir ionisant dans le scintillateur étant plus important que celui des alphas, on s'attendrait également à observer une composante lente plus importante que pour les alphas, mais nous observons l'inverse. Ce comportement pour les fragments de fission n'a pas encore pu être compris.

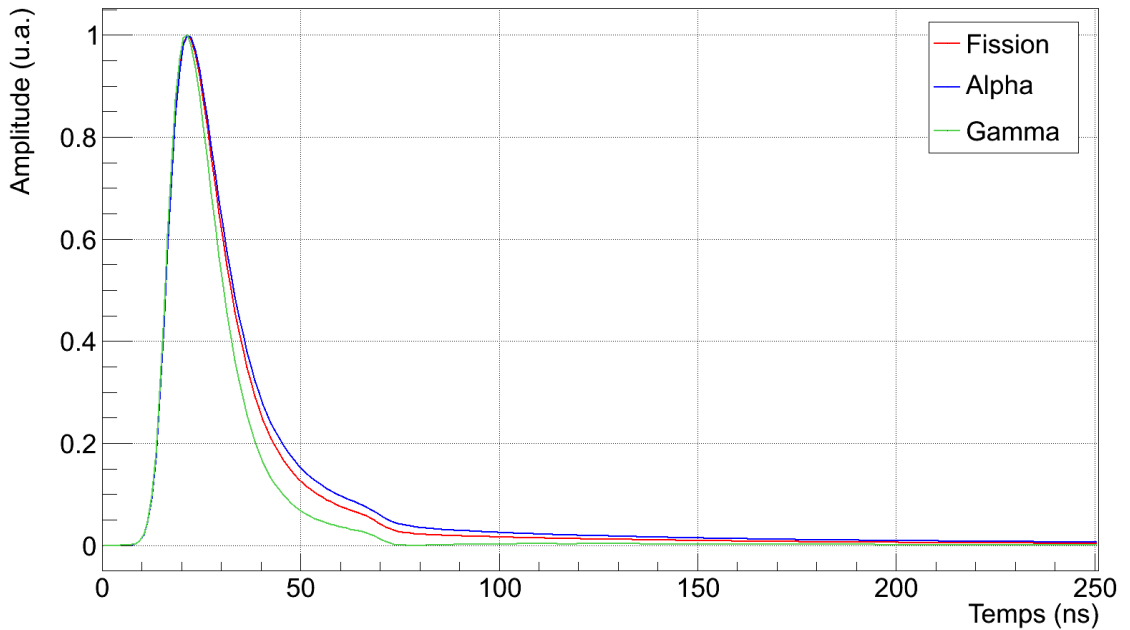


FIGURE 2.15 – Signaux de fluorescence moyens des évènements fission, alpha et gamma dans une cible active scintillante en EJ-309 dopée au  $^{252}\text{Cf}$ .

L'analyse de la forme de ces signaux nous permet ensuite d'identifier le type de particule détectée. Il s'agit de la *discrimination de forme du signal*, ou PSD<sup>1</sup> [15, 72]. La PSD peut être réalisée par plusieurs méthodes, les plus courantes étant la détection du passage à zéro, nommée *zero-crossing technique*, et l'intégration de charges. La première consiste à détecter le passage par zéro d'un signal bipolaire, ce dernier résultant du traitement du signal de fluorescence traité par un discriminateur à fraction constante. Le temps du passage par zéro étant dépendant de la

<sup>1</sup>. Pulse Shape Discrimination

constante de temps de la décroissance du signal, la discrimination des particules est effectuée par mesure de la différence en temps entre le passage par zéro et le début du signal.

La méthode que nous utilisons est la méthode par intégration de charges, représentée schématiquement sur la figure 2.16. Le principe est de comparer la charge des différentes composantes du signal de fluorescence. Nous intégrons les différentes composantes du signal sur deux intervalles en temps  $[t_0; t_1]$  et  $[t_1; t_2]$  que nous appelons charge rapide  $Q_{\text{fast}}$  et charge lente  $Q_{\text{slow}}$ . Le choix des portes d'intégration est détaillé au paragraphe 2.5.2. Nous en calculons ensuite le rapport  $Q_{\text{ratio}}$  entre la charge rapide et la charge lente :

$$Q_{\text{ratio}} = \frac{Q_{\text{slow}}}{Q_{\text{fast}}} \quad (2.5)$$

Enfin, nous calculons également la charge totale du signal  $Q_{\text{tot}}$  qui est proportionnelle à l'énergie déposée dans le scintillateur.

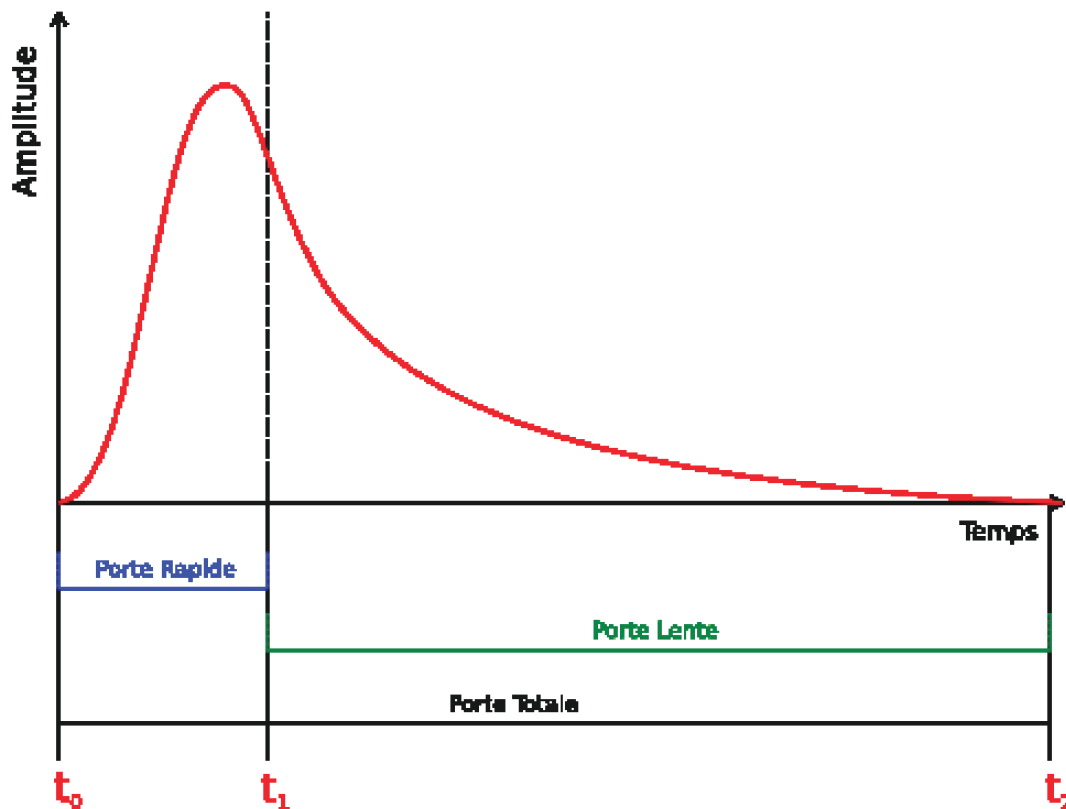


FIGURE 2.16 – Représentation schématique de la méthode de la PSD appliquée à un signal de photomultiplicateur.

Le calcul des intégrales de ces composantes nous permet alors de construire un histogramme à deux dimensions, dit de discrimination, avec les valeurs de  $Q_{\text{ratio}}$  en ordonnée et la charge totale en abscisse. Un exemple est présenté sur la figure 2.17. Il s'agit d'un comptage effectué avec une cible active scintillante basée sur du EJ-309 et contenant du  $^{252}\text{Cf}$  en solution. On observe une très bonne séparation entre les rayonnements gamma et beta avec un  $Q_{\text{ratio}}$  plus faible, centré sur 0,63, les événements de fission avec un  $Q_{\text{ratio}}$  centré sur 1,06 et les alphas sur 1,29.

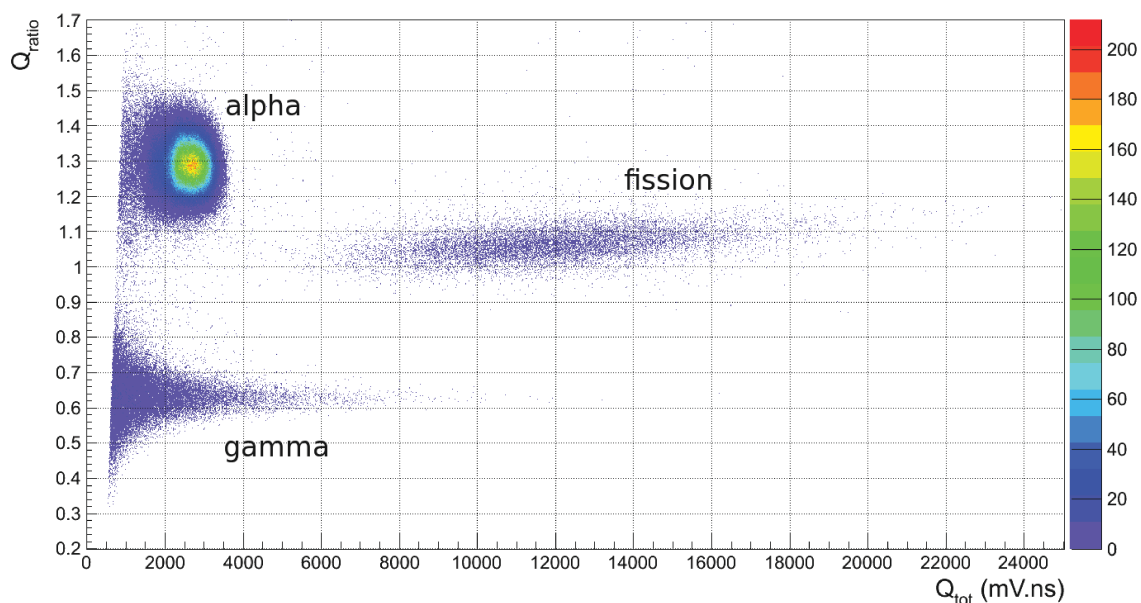


FIGURE 2.17 – Histogramme de discrimination des évènements dans une cible active scintillante à base d'EJ309 et contenant du  $^{252}\text{Cf}$ .

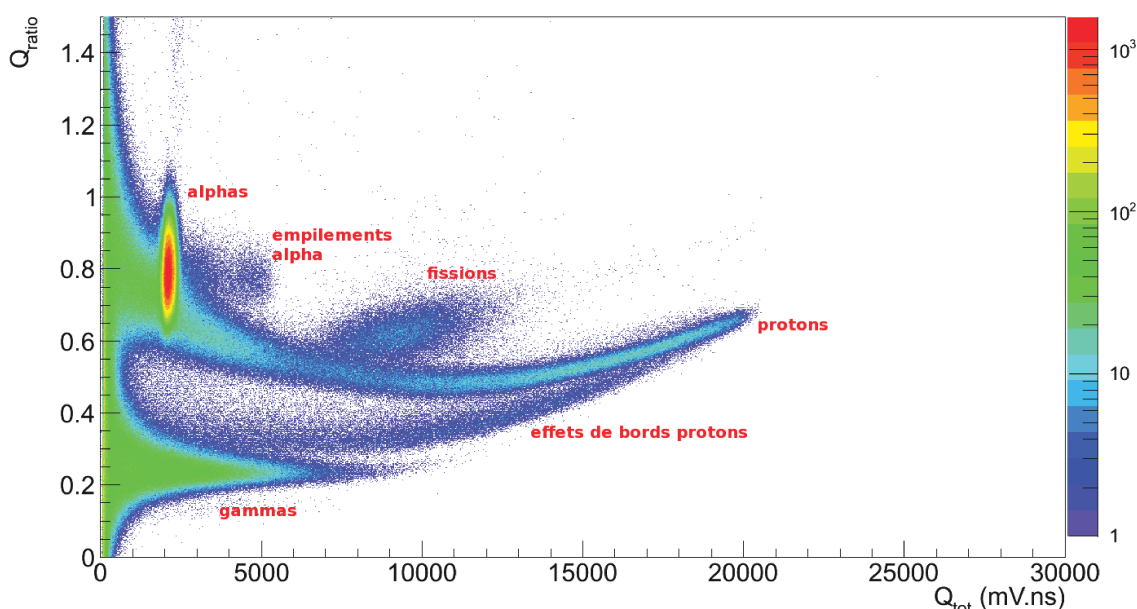


FIGURE 2.18 – Histogramme de discrimination des évènements dans une cible active scintillante à base DIN contenant 1 kBq de  $^{252}\text{Cf}$  sous faisceau de neutrons de 18 MeV.

La figure 2.18 représente un histogramme de discrimination mesuré avec une cible active scintillante basée sur du DIN et contenant du  $^{252}\text{Cf}$  en solution. Ces mesures ont été réalisées sous faisceau de neutrons de 18 MeV sur l'accélérateur 4 MV du CEA de Bruyères-le-Châtel afin de tester la PSD sous faisceau de neutrons. En plus des particules déjà évoquées, on observe également des évènements dus aux protons de recul produits par les neutrons et à leurs effets de bord dans la cellule scintillante. Il y a un léger recouvrement avec les évènements alpha du californium. Le point clé de cet histogramme est la séparation des protons de recul avec les évènements de fission. Elle est nécessaire pour pouvoir compter précisément les fissions et mesu-

rer une section efficace de fission induite par neutrons. Une bonne séparation est observée pour les cocktails scintillants basés sur du DIN et du EJ-309.

### 2.5.2 Optimisation de la PSD dans la cible active

La qualité d'une PSD peut être déterminée par le calcul d'un *facteur de mérite*, souvent utilisé pour quantifier la discrimination des protons de recul et des gammas dans les scintillateurs classiques. Le facteur de mérite entre deux types d'évènements  $i$  et  $j$  se calcule grâce à la projection de l'histogramme de discrimination sur l'axe des ordonnées. Le facteur de mérite est le rapport de la différence des centroïdes des pics associés aux évènements sur la somme de leurs largeurs à mi-hauteur [49] :

$$\text{FOM}_{ij} = \frac{C_i - C_j}{\text{FWHM}_i + \text{FWHM}_j}$$

La qualité de la PSD va varier selon les portes d'intégration utilisées. Habituellement, la porte rapide commence dès la montée du signal et se termine quelques nanosecondes après son maximum. La porte lente est sa complémentaire jusqu'à la fin du signal, typiquement 240 ns. Le temps de montée d'un signal de fluorescence d'une cible active scintillante à base d'EJ-309 est de l'ordre de 10 ns (cf. figure 2.15). Le réglage standard des portes d'intégration sur ce genre de signaux est donc :  $t_0 = 10$  ns,  $t_1 = 25$  ns et  $t_2 = 250$  ns afin d'intégrer la montée du signal et le début de sa décroissance dans la porte rapide.

Ces réglages ne sont cependant pas optimaux. La figure 2.19 présente les différents facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (courbe verte), alpha-gamma (courbe rouge) et fission-gamma (courbe bleue) en fonction de la longueur de la porte rapide lorsque son origine est fixée au début du signal à  $t_0 = 10$  ns. La meilleure PSD est obtenue pour une porte rapide de 28 ns avec des facteurs de mérite de :  $\text{FOM}_{\alpha,\gamma} = 2,41$ ,  $\text{FOM}_{\alpha,\text{Fission}} = 0,95$  et  $\text{FOM}_{\text{Fission},\gamma} = 1,79$ .

La PSD peut encore être améliorée en n'intégrant plus la montée du signal mais uniquement sa partie décroissante. La figure 2.20 présente les différents facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (courbe verte), alpha-gamma (courbe rouge) et fission-gamma (courbe bleue) en fonction de la longueur de la porte rapide dont l'origine est cette fois fixée au début de la décroissance du signal à  $t_0 = 21$  ns. On obtient alors la meilleure PSD avec une porte rapide de 10 ns pour laquelle les facteurs de mérite valent  $\text{FOM}_{\alpha,\gamma} = 2,77$ ,  $\text{FOM}_{\alpha,\text{Fission}} = 1,07$  et  $\text{FOM}_{\text{Fission},\gamma} = 2,17$ .

Enfin, on peut s'intéresser à l'origine de la porte rapide dans la décroissance du signal. La figure 2.21 représente les différents facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (courbe verte), alpha-gamma (courbe rouge) et fission-gamma (courbe bleue) en fonction de l'origine de la porte rapide de durée fixée à 10 ns. Les performances de la PSD se dégradent dès que l'origine de la porte rapide s'éloigne du maximum du signal se trouvant à 20 ns. Les meilleurs résultats sont obtenus avec une origine fixée à 21 ns.

Ces réglages doivent être ajustés selon le scintillateur utilisé mais dans la plupart des cas, nous avons observé qu'une porte rapide de l'ordre de la dizaine de nanosecondes démarrant une à deux nanosecondes après le maximum du signal donnera la

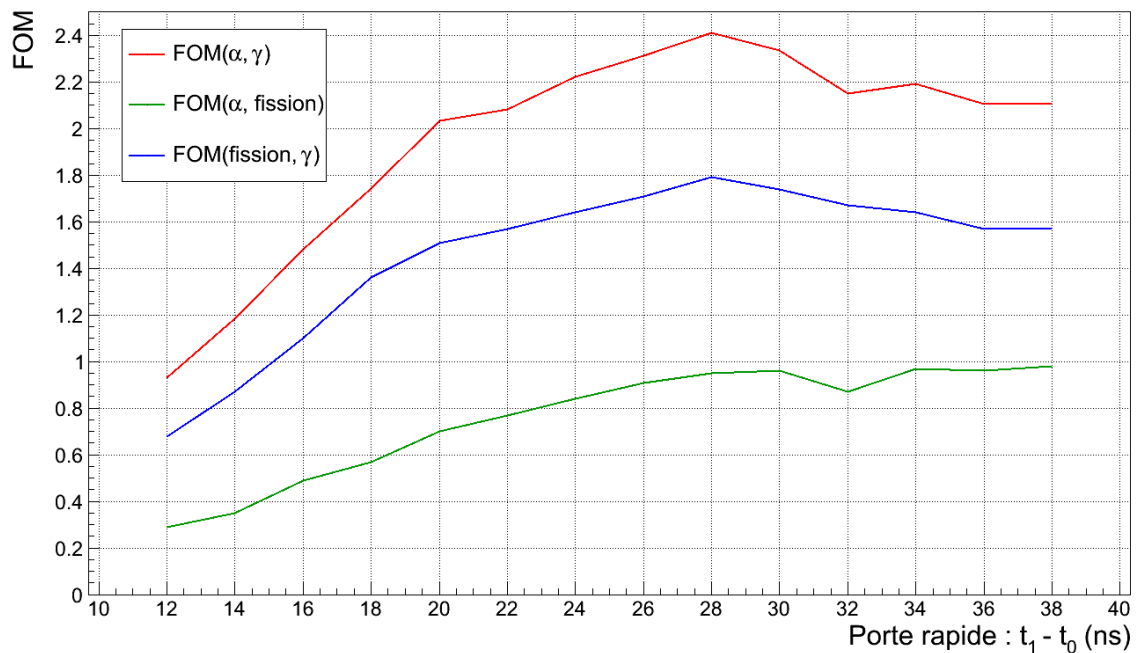


FIGURE 2.19 – Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de longueur de la porte rapide d'origine fixée à  $t_0 = 10$  ns.

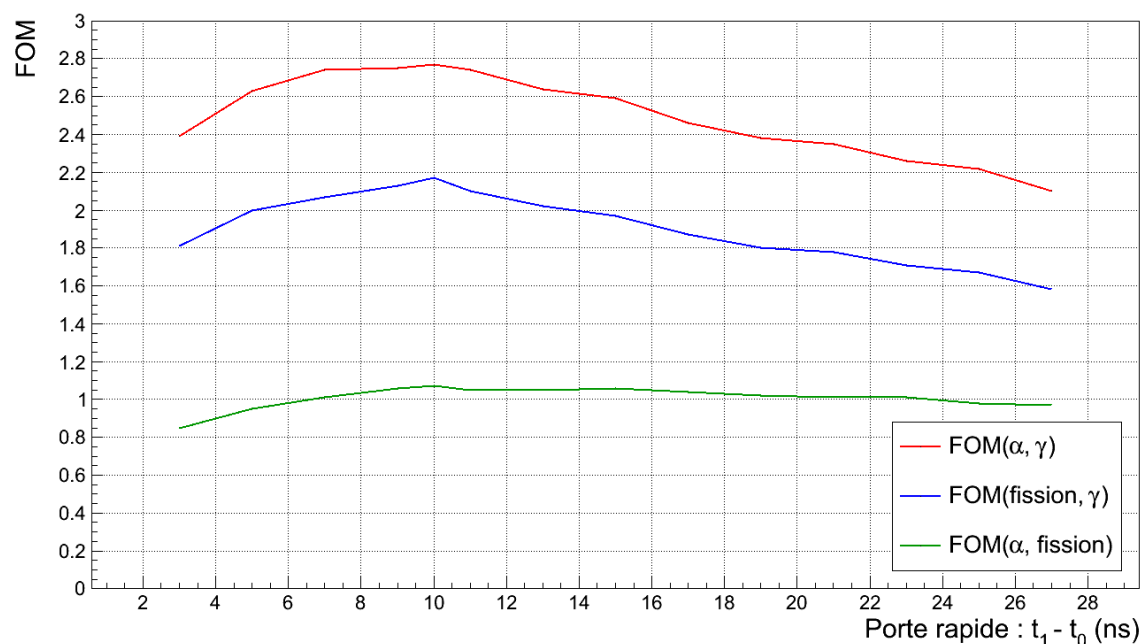


FIGURE 2.20 – Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de longueur de la porte rapide d'origine fixée à  $t_0 = 21$  ns.

meilleure PSD pour la discrimination des alphas, des fissions et des gammas.

Dans le cadre d'un comptage du nombre de fissions, le paramètre le plus important est la séparation entre les protons et les fissions. Nous mesurons un facteur de mérite pour la discrimination proton-fission en fonction de la charge totale des événements dans la cible active. Son évolution est représentée sur la figure 2.22 pour

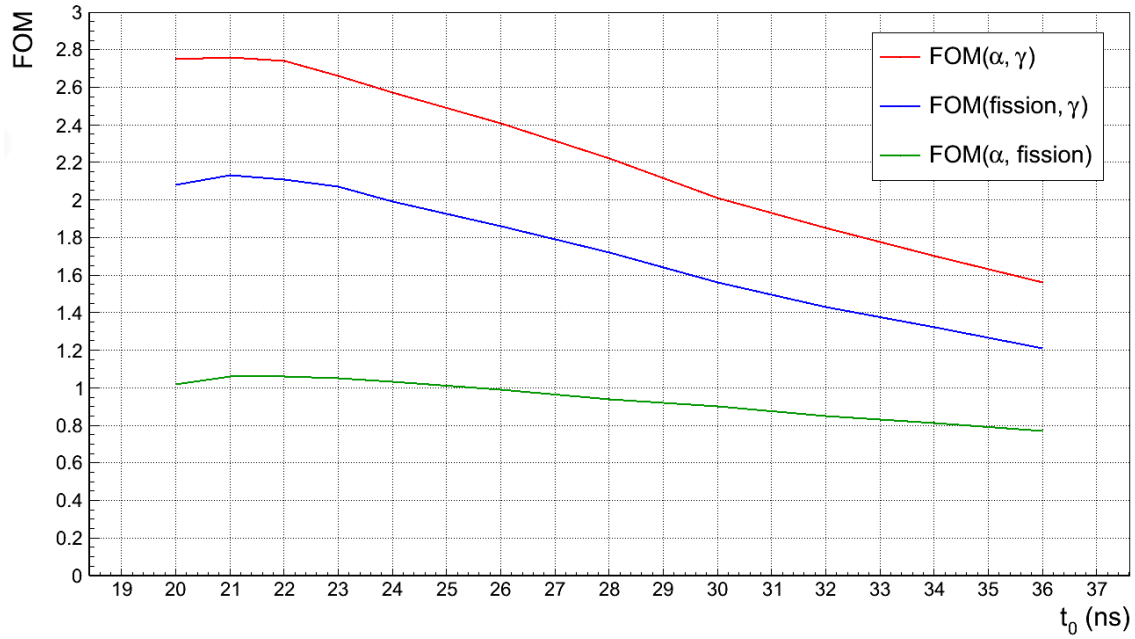


FIGURE 2.21 – Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de l'origine de la porte rapide de durée fixée à 10 ns.

une mesure sous faisceau de neutrons de 18 MeV avec une cible active à base de DIN contenant 1 kBq de  $^{252}\text{Cf}$ . L'histogramme de discrimination correspondant est celui de la figure 2.18. Les facteurs de mérite que nous mesurons sont compris entre 1,07 pour les faibles charges totales et 2,55 pour les charges totales les plus élevées. Ces résultats sont obtenus avec une porte rapide de 10 ns démarrant 2 ns après le maximum du signal de fluorescence.

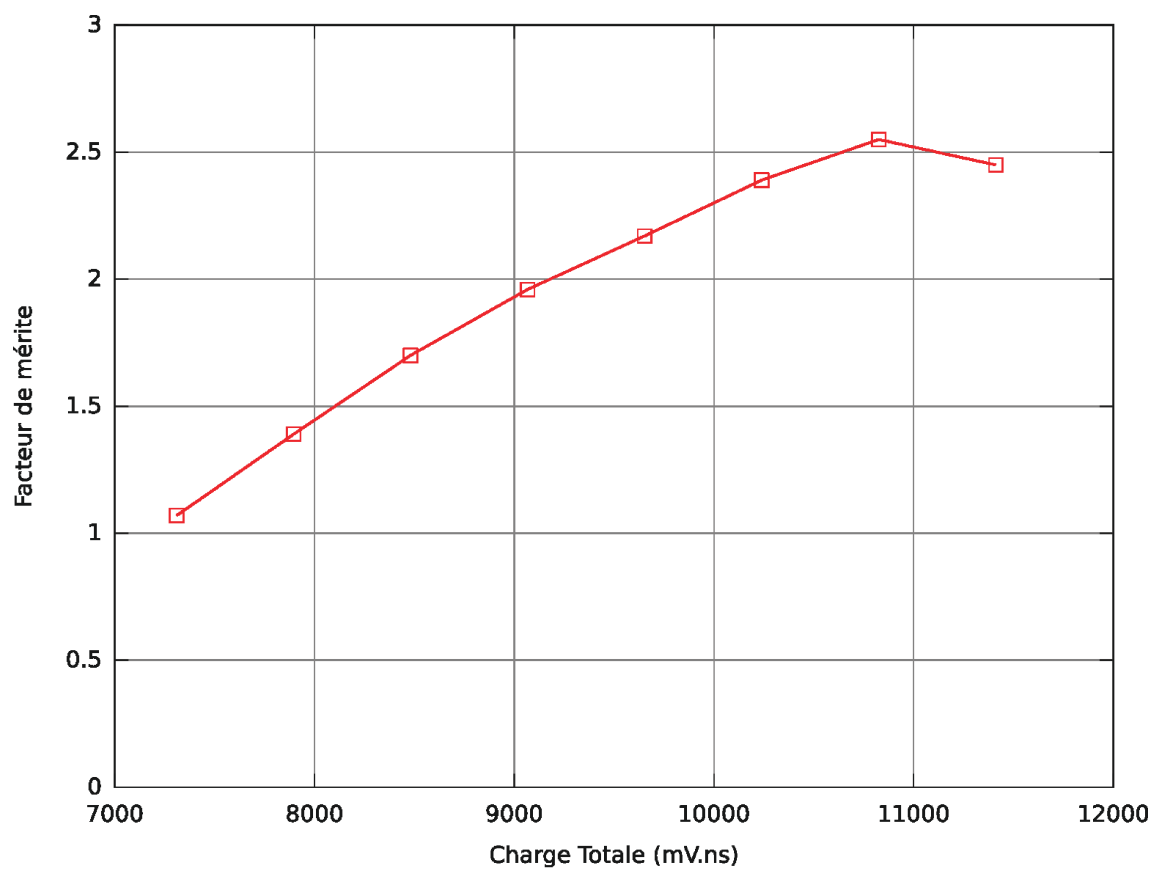


FIGURE 2.22 – Facteur de mérite pour la discrimination proton-fission en fonction de la charge totale.



### 2.5.3 Empilement d'évènements et détection de la fission

Nous avons constaté qu'une bonne PSD et une séparation entre les évènements de fission et les protons de recul sont essentielles pour réaliser des mesures de section efficace induite par neutrons avec la cible active scintillante. Cependant, la capacité à compter les fissions peut se dégrader lors d'expériences sous faisceau de neutrons. Le flux de neutrons va donner lieu à des empilements de signaux de fluorescence. La conséquence de ces empilements est un changement de la charge des différentes composantes lors de l'intégration et une pollution de l'histogramme de discrimination. Or, les cocktails scintillants disposant d'une bonne séparation entre les évènements protons de recul et les évènements de fission sont le DIN et l'EJ-309. Ces cocktails ont une faible solubilité des actinides : jusqu'à  $1 \text{ mg mL}^{-1}$ . Le taux de fission peut être faible par rapport aux autres types d'évènements et notamment les protons de recul. Il faut alors augmenter soit le flux de neutrons soit le volume du détecteur, mais au final le taux de comptage devient élevé et on a un problème d'empilement analogique des signaux qu'il faut pouvoir rejeter lors d'une mesure.

A ce jour, aucune méthode de réjection des empilements n'est disponible dans les modules d'acquisition FASTER que nous utilisons. Nous avons donc implémenté un algorithme de réjection des empilements qui permet de traiter des signaux échantillonnés enregistrés par l'acquisition. Le principe de cette méthode de réjection distingue trois cas d'empilements.

Le premier cas, et le plus rare, est celui d'un empilement parfait, c'est à dire que le signal résultant correspond à un signal dont l'amplitude vaut la somme des deux signaux empilés. Ce cas de figure ne peut pas être détecté par notre méthode.

Le second cas comporte des empilements dont les signaux sont très proches en temps, et les deux signaux ne peuvent être distingués. Par contre le temps de montée de ce signal est supérieur à celui d'un signal sans empilement. Nous pouvons donc les rejeter grâce à leurs temps de montée. Pour des signaux sans empilement, la distribution du temps de montée est piquée sur une valeur caractéristique, typiquement 7 ns pour une cible active à base d'EJ-309 avec une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 2 ns. Le temps de montée d'empilements de signaux très proches en temps s'étend jusqu'à 17 ns. Nous rejetons alors ce type d'empilements dès lors que le temps de montée du signal est supérieur à 9 ns.

Le dernier cas consiste en l'empilement d'un signal sur la partie décroissante du premier signal. La détection de ces cas est effectuée en deux phases. Nous utiliserons par la suite des données provenant d'expériences hors faisceau. Les signaux échantillonnés proviennent d'une cellule scintillante à base d'EJ-309 contenant 1 kBq de  $^{252}\text{Cf}$  et couplée à un tube photomultiplicateur Hamamatsu R6231.

La détection de ce dernier cas d'empilement commence par la dérivation du signal échantillonné  $S(t)$ . On peut déduire du théorème de Taylor [89] les deux relations suivantes :

$$S(t - ah) = S(t) - ah \cdot S'(t) + \sum_{k=2}^n \frac{(-1)^k (ah)^k}{k!} \cdot S^{(k)}(t) + o(h^n) \quad (2.6)$$

$$S(t + ah) = S(t) + ah \cdot S'(t) + \sum_{k=2}^n \frac{(ah)^k}{k!} \cdot S^{(k)}(t) + o(h^n) \quad (2.7)$$

Ces deux relations nous permettent ensuite de calculer, par combinaison linéaire avec  $a = [1; 3]$ , une dérivée de  $S$  en  $t$  par approximation centrée à 3 pas :  $t \pm h$ ,  $t \pm 2h$  et  $t \pm 3h$  :

$$S'(t) = \frac{155 S(t+h) - S(t+2h) - S(t+3h) + S(t-3h) + S(t-2h) - 155 S(t-h)}{320h} \quad (2.8)$$

Le nombre de pas de cette approximation a été choisi par compromis entre la précision de la dérivée calculée et le temps de calcul. Les signaux échantillonnés étant bruités, l'approximation de la dérivée avec un calcul à un ou deux pas n'est pas suffisamment précise et le bruit peut être détecté comme un empilement. Trois pas suffisent pour calculer une dérivée de manière satisfaisante et s'affranchir du bruit.

La figure 2.23 représente deux signaux échantillonnés (haut) et leurs signaux dérivés correspondants (bas). Ces deux signaux possèdent un empilement dont la dérivation donne lieu à un maximum et un minimum suivant ceux du signal initial. Une première approche pour détecter ces empilements serait de détecter le passage par zéro ou bien via un seuil fixé pour le deuxième maximum. Cela fonctionnerait dans le cas du signal empilé de droite. Cependant, dans le cas du signal de gauche, l'empilement a lieu au début de la décroissance du signal principal. Du fait de sa faible amplitude par rapport au signal initial, la dérivée ne présente pas de passage par zéro, la petite variation qu'il engendre dans la dérivée restant de faible amplitude dans le lobe négatif de la dérivée du signal principal. Une détection à seuil fixe ne permet donc pas de rejeter ces cas d'empilement.

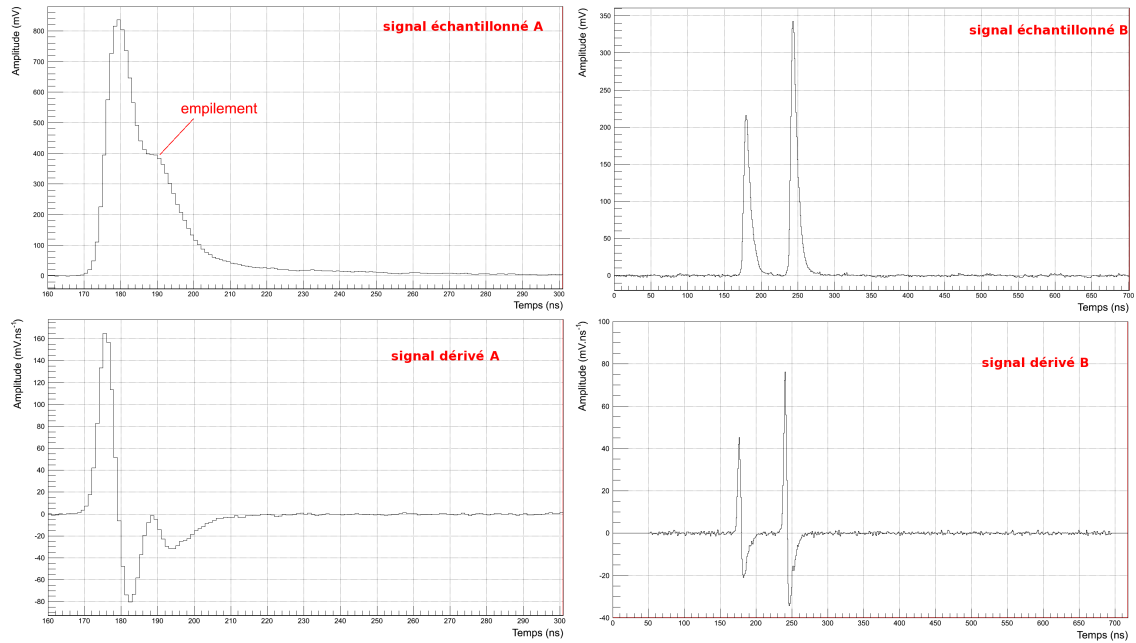


FIGURE 2.23 – Exemple de signaux échantillonnés (haut) et de leurs signaux dérivés correspondants (bas).

Pour s'affranchir de cet effet, nous pouvons effectuer une détection du maximum et du minimum sur une fenêtre en temps glissante  $\Delta t$ . La largeur de cette fenêtre a été choisie afin de pouvoir contenir le maximum et le minimum de la dérivée du signal empilé qui est de l'ordre du temps de montée du signal :  $\Delta t = 8$  ns. Ainsi, nous pouvons tracer un signal pile-up  $PU(t)$  de la différence d'amplitude entre les

maxima et minima en fonction du temps, détectés dans cette fenêtre :

$$PU(t) = \left[ \max(S') - \min(S') \right]_t^{t+\Delta t} \quad (2.9)$$

La figure 2.24 représente les signaux pile-up correspondant aux deux signaux précédents. On observe un premier pic correspondant au signal initial et un second pic dû à un empilement. Une simple détection à seuil sur ces signaux permet ainsi de détecter les empilements et de les rejeter.

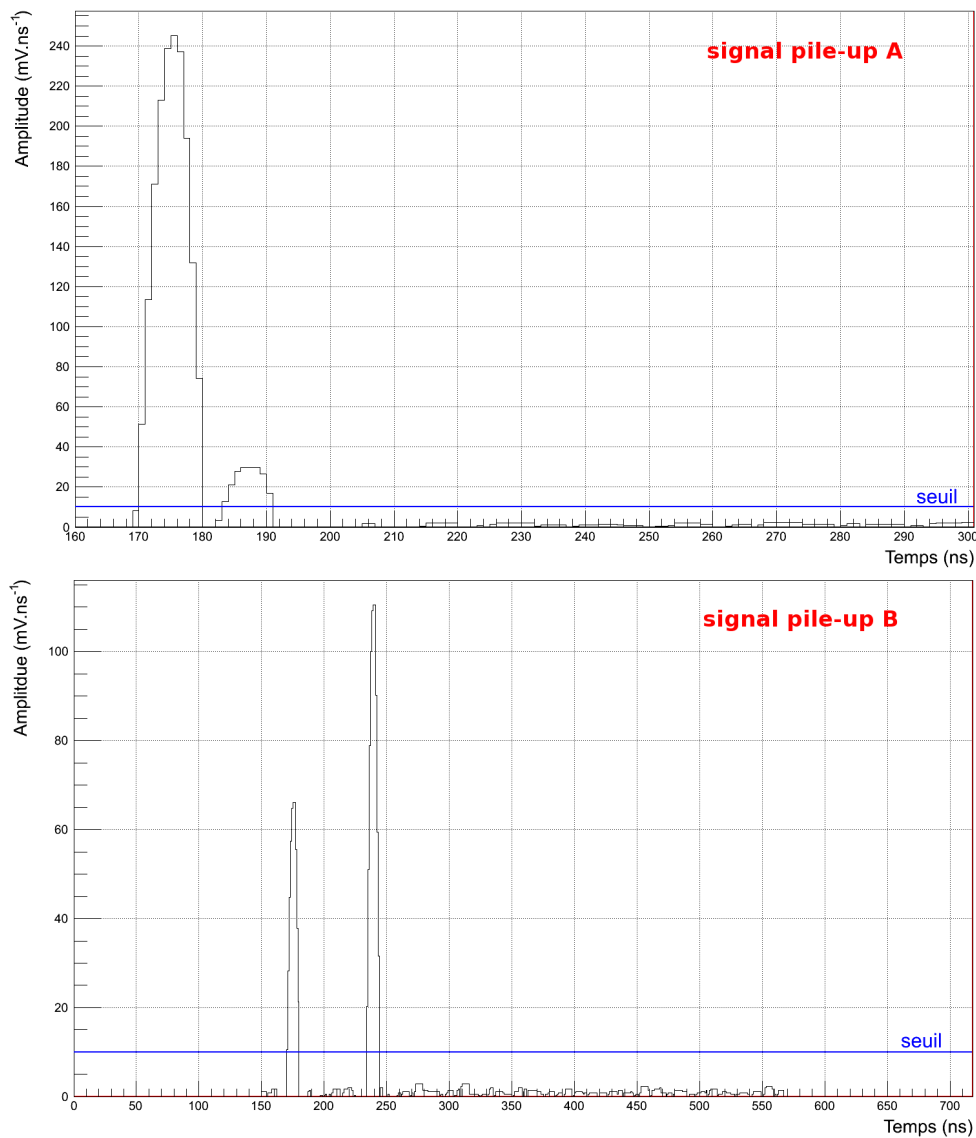


FIGURE 2.24 – Exemple de signal de pile-up  $PU(t)$  construit à partir des deux signaux présentées sur la figure 2.23.

### 2.5.3.1 Exemple pour la fission du $^{232}\text{Th}$

Dans cet exemple, des signaux échantillonnés ont été acquis avec une cible active scintillante à base de DIN contenant 1 mg de  $^{232}\text{Th}$  sous faisceau de neutrons de

2,2 MeV sur l'accélérateur 4 MV du CEA-DAM de Bruyères-le-Châtel. Un histogramme de discrimination sans réjection des empilements est présentée sur la figure 2.25. La section efficace de fission du  $^{232}\text{Th}$  pour des neutrons de 2,2 MeV étant de 316 mb et le courant limité à 6  $\mu\text{A}$  sur l'accélérateur, le taux de fission atteint reste faible, de l'ordre d'une fission par seconde. Les empilements nombreux de signaux dus aux protons de recul empêchent tout comptage des fissions à partir de l'histogramme de discrimination.

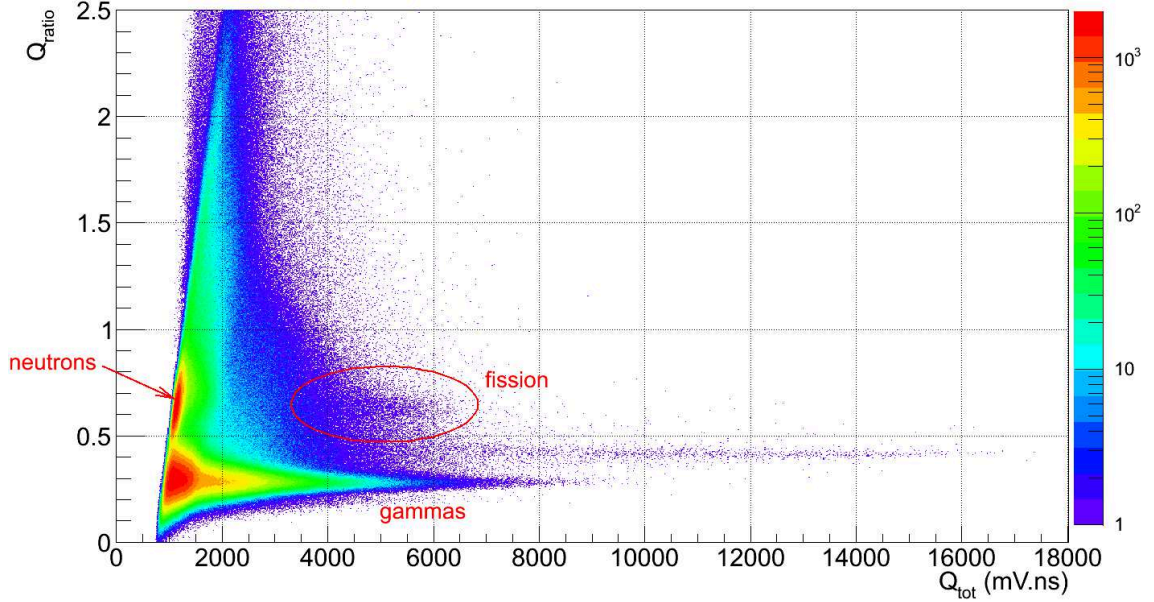


FIGURE 2.25 – Histogramme de discrimination d'une cible active scintillante contenant 1 mg de  $^{232}\text{Th}$  sous faisceau de neutrons de 2,2 MeV sans réjection des empilements.

Après traitement des signaux échantillonnés par le programme de réjection des empilements, nous obtenons un histogramme de discrimination tel que présenté sur la figure 2.26. Les événements de fission ne sont plus pollués par les empilements et peuvent être comptés.

Par ailleurs, on peut vérifier que l'on rejette bien la bonne quantité d'empilements en calculant le taux d'empilements détectés. Ce dernier s'exprime en fonction du taux de comptage dans la cible active  $\tau_0$  et de la probabilité  $P_0$  d'avoir un seul événement dans l'intervalle de temps  $\Delta t$  [49] :

$$\begin{aligned}
 R_{\text{PU}} &= \tau_0 \cdot (1 - P_0) \\
 &= \tau_0 \cdot (1 - e^{-\tau_0 \Delta t}) \\
 &\underset{\Delta t \rightarrow 0}{=} \tau_0^2 \cdot \Delta t
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

Pour un intervalle de temps et un taux de comptage fixes, le taux d'empilements est constant au cours du temps. La figure 2.27 représente le nombre d'empilements rejetés par notre programme en fonction du temps sur la partie décroissante du signal principal. Il est légèrement décroissant, l'ajustement donne la relation  $4200 - 1,79 \cdot t$ , et présente un déficit du nombre d'empilements rejetés aux temps faibles inférieurs à 10 ns. Ce déficit s'explique par la présence d'empilements parfaits non rejetés ainsi que par le cas des empilements de signaux très proches en temps, rejetés

par le test sur le temps de montée mais non comptabilisés ici. Le taux de comptage moyen lors de la mesure était de l'ordre de 150000 coups par seconde, ce qui donne un taux d'empilements de l'ordre de 5175 coups par seconde pour une porte de comptage de 230 ns. Avec un taux de 4200 empilements rejetés par seconde, soit 81,2% des empilements de troisième type, auquel il faut ajouter 1,5% d'événements rejetés lors de la vérification en temps de montée, notre programme permet de rejeter 82,7% des empilements.

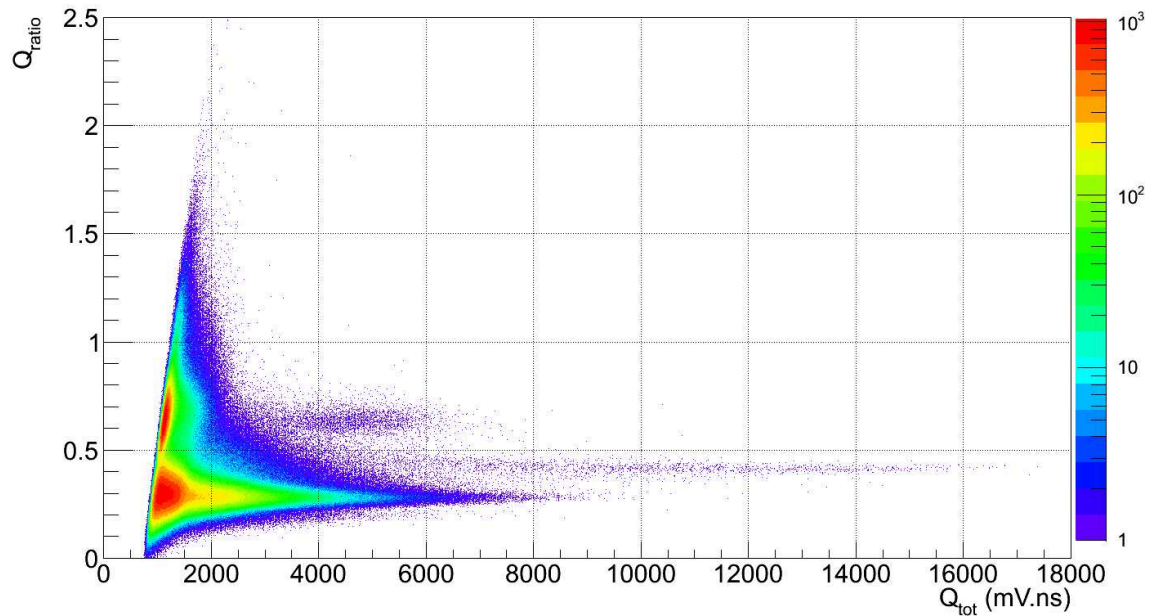


FIGURE 2.26 – Histogramme de discrimination d'une cible active scintillante contenant 1 mg de  $^{232}\text{Th}$  sous faisceau de neutrons de 2,2 MeV après réjection des empilements.

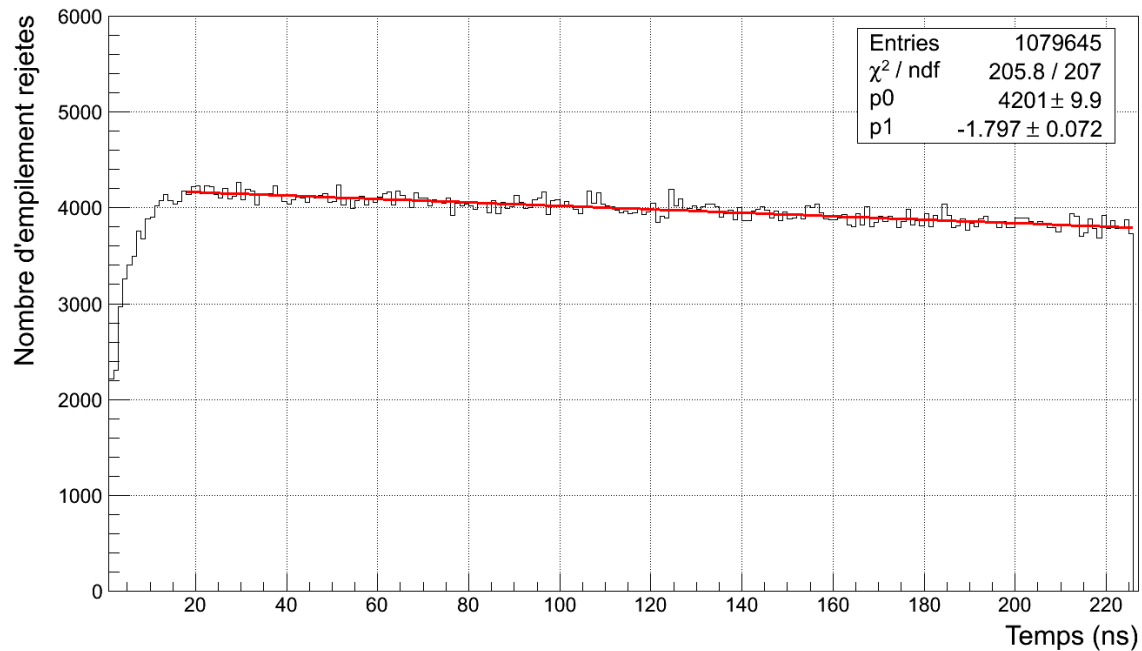


FIGURE 2.27 – Distribution en temps des empilements détectés sur la partie décroissante du signal principal.

## 2.6 Résolutions en énergie et réponse du scintillateur aux fragments de fission

Comme nous l'avons vu dans les paragraphes précédents, l'incorporation d'un actinide directement en solution dans le volume actif du détecteur permet d'atteindre des efficacités de détection d'alphas et de fragments de fission très élevées. Cela signifie qu'ils déposent la totalité de leur énergie dans le scintillateur et que l'on peut espérer mesurer leur énergie cinétique. Il faut cependant une bonne résolution en énergie pour pouvoir faire des mesures précises d'énergie cinétique. La résolution en énergie est gouvernée par la quantité de photons de scintillation émis et par la sensibilité de la photocathode du tube photomultiplicateur aux longueurs d'onde d'émission du scintillateur.

Avec une cible active scintillante à base de DIN contenant du  $^{252}\text{Cf}$  en solution couplée à un tube photomultiplicateur Hamamatsu H6533 doté d'une photocathode bialkali d'efficacité quantique 25%, la résolution en énergie aux alphas de 6, 118 MeV du californium 252 est de l'ordre de 750 keV, soit 12%. L'utilisation de tubes photomultiplicateurs Hamamatsu R6231 et R7600U à photocathodes super bialkali et ultra bialkali avec de meilleures efficacités quantiques (respectivement 35% et 45%) permet d'atteindre de meilleures résolutions en énergie alpha, respectivement de 10% et 9%.

La distribution en énergie cinétique totale des fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$  est centrée sur 187,5 MeV avec une largeur à mi-hauteur de 26,5 MeV [97]. La quantité d'énergie déposée dans le scintillateur est bien plus importante que pour les alphas ; on s'attend donc à ce que la quantité de photons de scintillations dus aux fragments de fission soit plus importante et donc que la résolution en énergie soit meilleure. Cependant, nous observons une distribution en énergie cinétique totale ayant une largeur à mi-hauteur de 48%, soit 90 MeV. Une telle largeur ne peut pas provenir de variations de l'énergie cinétique des fragments mais de la réponse du scintillateur aux fragments de fission qui reste inconnue. Par exemple, nous savons que la valeur du  $Q_{\text{ratio}}$  devrait augmenter avec la charge de la particule mais nous observons un comportement différent avec les fragments de fission dont le  $Q_{\text{ratio}}$  est plus faible que celui des alphas et ne varie pas.

Afin d'essayer de comprendre ces comportements, nous avons étudié la réponse d'un scintillateur à base de DIN aux fragments de fission grâce à des mesures par spectrométrie (en coïncidence avec un détecteur germanium). L'objectif était de sélectionner une paire de fragments de fission avec le germanium et de mesurer la réponse du scintillateur aux fragments sélectionnés. Cette coïncidence nous permet de tracer l'énergie du rayonnement gamma détecté par le germanium en fonction du temps après la fission dans la cible active scintillante, comme représenté sur la figure 2.28. L'axe des abscisses correspond au temps de détection du rayonnement gamma et l'axe des ordonnées à son énergie. Outre la grande quantité de gammas prompts à  $t \simeq 100$  ns, on observe des rayonnements gammas retardés émis par des fragments de fission formés dans des états isomériques. L'énergie et la durée de ces émissions de rayonnements gammas sont caractéristiques des états isomériques d'un noyau et nous permettent d'associer une fission à un fragment. On mesure par exemple deux rayonnements gammas de 297 keV et 1279 keV émis par des états isomériques du  $^{134}_{52}\text{Te}$  de durées de vie respectives de 136 ns et 161 ns [39].



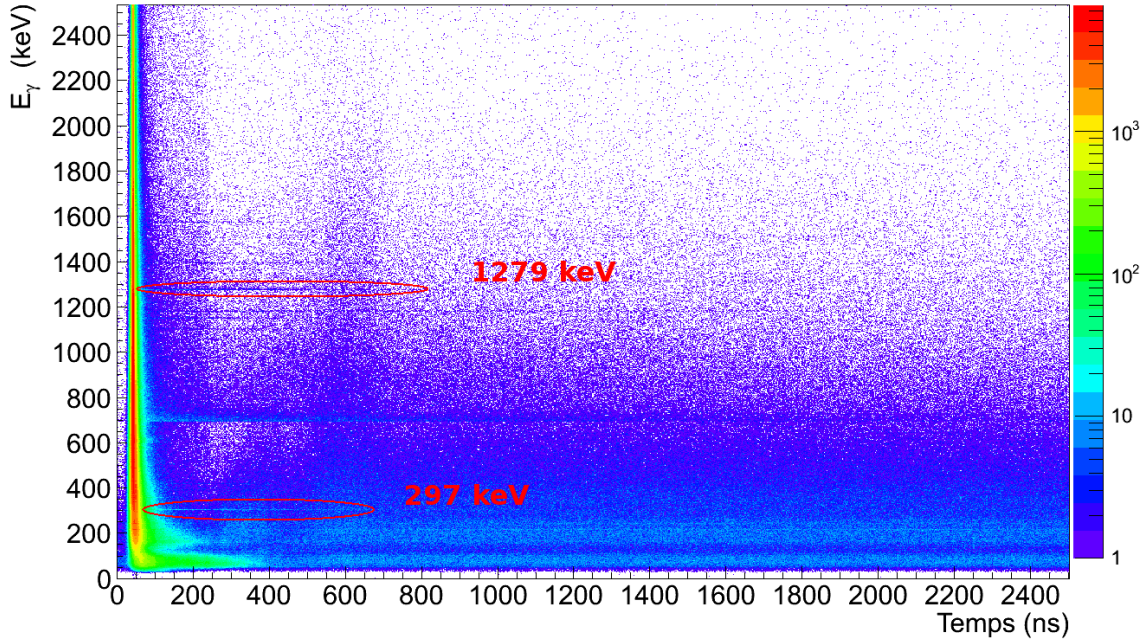


FIGURE 2.28 – Histogramme bidimensionnel représentant l'énergie des rayonnements gamma détectés par un germanium en fonction du temps après la fission dans la cible active.

Si on sélectionne les fissions ayant lieu dans la cible active en coïncidence avec les émissions de rayonnements gamma de 1279 keV, on observe alors le dépôt d'énergie dû à des paires de fragments tellure/palladium dans la cible active. On peut alors comparer la distribution de cette paire de fragments dans l'histogramme de discrimination à celle de fissions non assignées à des fragments. La figure 2.29 représente les distributions en charge totale  $Q_{\text{tot}}$  et en  $Q_{\text{ratio}}$  des événements de fission assignés à la paire de fragments tellure/palladium (en bleu) et non assignés à une paire de fragments (en rouge) pour des statistiques équivalentes.

Pour une paire de fragments donnée la largeur de la distribution en énergie cinétique totale est typiquement de l'ordre de 12 MeV [97]. La largeur à mi-hauteur de la distribution en charge totale de la paire tellure/palladium mesurée ici est de l'ordre de 100 MeV. De plus, les écarts mesurés entre les distributions assignées et non assignées à la paire tellure/palladium sont significativement inférieurs à leurs écarts-types. Pour une même paire de fragments, la réponse du scintillateur varie donc autant que pour toutes les fragmentations induisant une mauvaise résolution en énergie et rendant impossible toute mesure précise de l'énergie cinétique totale.

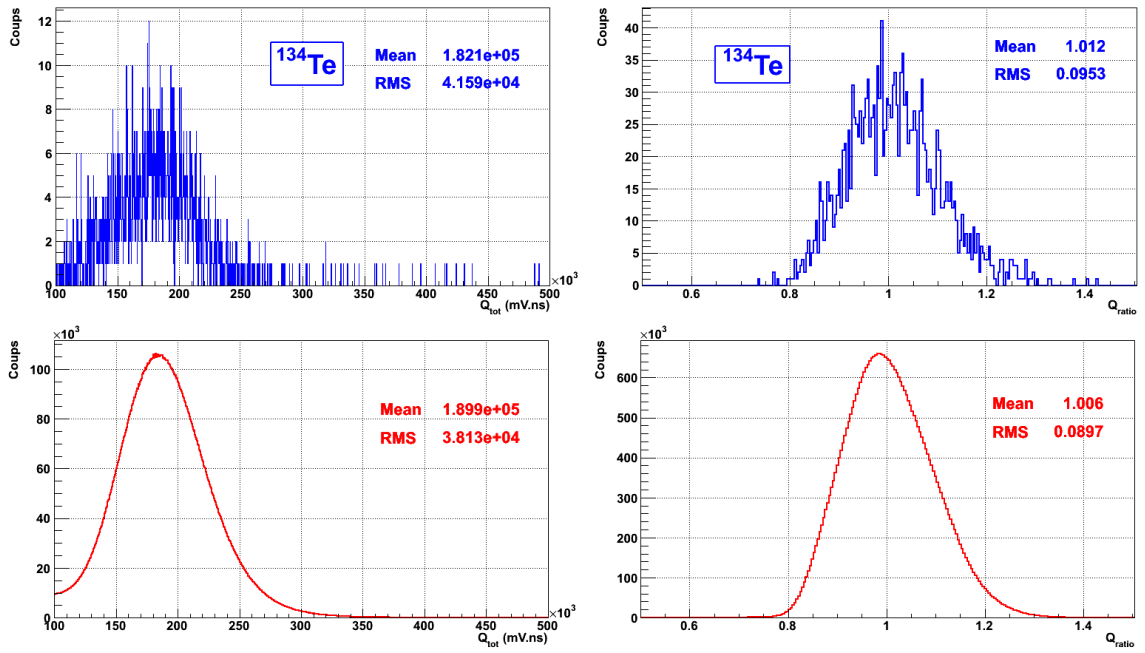


FIGURE 2.29 – Distribution en charge totale  $Q_{\text{tot}}$  et en  $Q_{\text{ratio}}$  des évènements de fission assignés à la paire de fragments tellure/palladium (en bleu) et non assignés à une paire de fragments (en rouge).



## 2.7 Etude de cocktails scintillants

Les cocktails scintillants que nous avons utilisés avant cette étude sont l'Alphaex commercialisé par Ordela Inc. et un cocktail basé sur du DIN (DIN #1). Leur composition est détaillée dans le tableau 2.4. Cependant, ils ne permettent pas d'utiliser des actinides en concentrations élevées tout en ayant une bonne séparation alpha/fission. Le DIN #1 offre une bonne séparation entre les protons de recul et les fragments de fission mais la solubilité des actinides dans ce solvant reste faible, au maximum  $1 \text{ mg mL}^{-1}$  de  $^{232}\text{Th}$  et  $3 \text{ mg mL}^{-1}$  de  $^{235}\text{U}$ . Avec l'Alphaex, nous avons pu mettre en solution jusqu'à  $17 \text{ mg mL}^{-1}$  de  $^{232}\text{Th}$  et  $50 \text{ mg mL}^{-1}$  d'uranium naturel mais les protons de recul recouvrent les fragments de fission sur l'histogramme de discrimination.

Nous avons donc dû réaliser une étude de cocktails scintillants afin de trouver un nouveau cocktail scintillant remplissant ces deux conditions : une bonne solubilité des actinides dans le solvant et une bonne séparation entre les protons de recul et les fragments de fission.

### 2.7.1 Les cocktails scintillants liquides

Dans la recherche de nouveaux cocktails scintillants, nous ne nous sommes pas limités au cahier des charges cité précédemment mais avons également testé des solutions présentant d'autres avantages. Ainsi, nous avons testé le scintillateur EJ-315 qui est un scintillateur à base de benzène deutéré. L'avantage est qu'il possède un atome d'hydrogène pour 141 atomes de deutérium. La quantité de protons de recul est donc beaucoup plus faible que pour les autres scintillateurs et les deutons de recul sont moins énergétiques donc cela pourrait améliorer la séparation entre les protons (ou deutons) et les fissions en limitant la perte d'énergie des neutrons. Par ailleurs, cela permet de réduire la quantité de captures radiatives des neutrons thermiques par l'hydrogène. Nous avons également cherché à utiliser des solvants moins nocifs tels que le linear-alkyl-benzène (LAB), un solvant utilisé comme alternative au pseudocumène dans les détecteurs grands volumes [52, 9], ou encore l'EJ-309.

Pour ce qui est de l'amélioration de la PSD, nous avons sélectionné des solvants connus pour avoir une bonne PSD tels que les dérivés du naphthalène (méthyl-naphthalène et di-isopropyl-naphthalène) ou le xylène. Ce dernier est le solvant utilisé dans le NE213 [93, 99] qui possède la meilleure PSD en terme de discrimination neutron/gamma des scintillateurs organiques. Nous avons également sélectionné le toluène, solvant utilisé dans l'Alphaex, car il possède une bonne solubilité des actinides.

Pour améliorer la PSD, il est également possible de jouer sur les fluorophores et d'utiliser des *PSD enhancers* ou *activateurs de PSD*. Comme nous avons pu le voir avec le DIN et l'Alphaex, la PSD des fragments de fission est inattendue dans le sens où la valeur du  $Q_{\text{ratio}}$  devrait augmenter avec la charge de la particule mais est plus faible que pour les alphas. Bien que ce phénomène ne soit pas compris, il est imputable au fait que les densités d'ionisation en fragments de fission sont très élevées. Une des stratégies que nous avons adoptée consiste à augmenter la concentration en fluorophore. Pour cela le PPO est un fluorophore de choix car il possède la meilleure solubilité dans les solvants organiques. Dans cette stratégie, nous nous

sommes inspirés du travail de N. Zaitseva [104] qui a montré qu'une augmentation de la concentration en fluorophore permettait d'obtenir une PSD dans les scintillateurs plastiques. L'autre stratégie consiste en l'utilisation de molécules organiques jouant le rôle d'activateurs de PSD. Ces molécules, telles que le naphthalène ou le di-isopropylnaphthalène, possèdent des durées de vie d'états triplets plus grandes. Ainsi, elles favorisent les interactions triplets-triplets et jouent le rôle de "réservoirs" à triplets.

Pour ce qui est de la solubilité des actinides, en-dehors de la recherche de solvants, nous avons essayé de jouer sur l'extraction elle-même. Nous ne présenterons pas de résultat mais nous avons essayé d'utiliser le TBP, une molécule extractante qui a la propriété d'être un chélatant, c'est à dire d'être une molécule cage qui emprisonne l'actinide. La solubilité n'a pas été améliorée par rapport aux extractions par de l'HDEHP. Enfin, nous avons testé la possibilité d'utiliser un agent surfactant ; cette technique est déjà utilisée dans des scintillateurs commerciaux tels que l'Ultima Gold. Dans ce cas, il n'y a pas d'extraction : l'actinide reste en solution aqueuse et le surfactant permet d'obtenir une micro-émulsion stable avec une phase organique scintillante et la phase aqueuse. Le résultat ne s'est pas avéré concluant : les rendements en lumière sont très faibles et la PSD est mauvaise.

La composition de ces différents cocktails est présentée dans le tableau 2.4. Dans la suite de cette étude, nous prendrons pour référence le cocktail DIN #1. Les rendements en lumière due aux alphas et aux fragments de fission sont mesurés relativement à ceux du DIN#1. Les performances de la PSD ont été observées grâce à une source Am-Be émettant des neutrons selon un spectre continu en énergie jusqu'à 10 MeV.

TABLE 2.4 – Composition des différents cocktails scintillants liquides étudiés.

Cocktail	Solvant	PSD enhancer	[C] (g/L)	Fluor #1	[C] (g/L)	Fluor #2	[C] (g/L)	Extractant
ALPHAEX	toluène	naphtalène	192	PBBO	3,5	–	–	HEDHP
DIN #1	DIN	–	–	PBBO	4	–	–	HDEHP
DIN #2	DIN	–	–	PPO	100	–	–	HEDHP
LAB #1	LAB	naphtalène	saturation	PBBO	4	–	–	HEDHP
LAB #2	LAB	naphtalène	50	PPO	200	bis-MSB	1	HEDHP
mNapht #1	méthylnaphtalène	–	–	PPO	100	–	–	HEDHP
mNapht #2	méthylnaphtalène	DIN	–	PPO	100	–	–	HEDHP
xylène #1	p-xylène	naphtalène	200	PPO	200	–	–	HEDHP
xylène #2	p-xylène	naphtalène	203	PPO	300	–	–	HEDHP
xylène #3	p-xylène	naphtalène	200	PPO	400	–	–	HEDHP
xylène #4	p-xylène	–	–	PPO	50	bis-MSB	4,25	HEDHP
xylène #5	p-xylène	–	–	PBBO	4	–	–	HEDHP
toluène #1	toluène	naphtalène	96	PPO	0,044	–	–	HEDHP
toluène #2	toluène	naphtalène	96	PPO	0,44	–	–	HEDHP
toluène #3	toluène	naphtalène	96	PPO	4,4	–	–	HEDHP
toluène #4	toluène	naphtalène	96	PPO	44	–	–	HEDHP
toluène #5	toluène	naphtalène	96	PPO	88	–	–	HEDHP
toluène #6	toluène	naphtalène	96	PPO	120	–	–	HEDHP
toluène #7	toluène	–	–	PPO	0,1	–	–	HEDHP
toluène #8	toluène	–	–	PPO	1	–	–	HEDHP
toluène #9	toluène	–	–	PPO	10	–	–	HEDHP
toluène #10	toluène	–	–	PPO	100	–	–	HEDHP
toluène #11	toluène	–	–	PPO	200	–	–	HEDHP
toluène #12	toluène	–	–	PPO	273	–	–	HEDHP
EJ-301	p-xylène	–	–	–	–	–	–	HEDHP
EJ-309	–	–	–	–	–	–	–	HEDHP
EJ-315	benzène deutéré	–	–	–	–	–	–	HEDHP
Ultima Gold	DIN	–	–	PPO	5,5	bis-MSB	0,5	–

### 2.7.1.1 Résultats

#### Les différents solvants

La figure 2.30 représente une comparaison des meilleurs rendements en lumière de fluorescence obtenus pour tous les solvants étudiés relatifs au DIN #1, leurs valeurs sont répertoriées en annexe dans le tableau A.1. Lorsque nous comparons les solvants des différents cocktails préparés à base de xylène, toluène, méthyl-naphthalène et LAB, nous remarquons que leurs rendements en lumière pour les alphas comme pour les fragments de fission sont tous inférieurs à ceux du DIN. De plus, aucun d'entre eux ne possède une PSD satisfaisante avec une séparation proton/fission. Les résultats du xylène et de l'EJ-301 sont les plus décevants. Utilisés pour la détection des neutrons pour leur excellente discrimination neutron/gamma, nous observons un recouvrement total des événements de fission par les protons de recul. L'EJ-315 également, qui aurait pu être une alternative aux scintillateurs hydrogénés grâce à ses deutons de recul moins énergétiques que les protons de recul d'un scintillateur classique, ne présente aucune séparation deuton/fission.

Seul l'EJ-309 est satisfaisant. Ses rendements en lumière sont supérieurs à ceux du DIN, respectivement 150% pour les alphas et 160% pour les fragments de fission après dégazage par bullage à l'argon. Enfin, il possède une très bonne PSD avec une bonne séparation proton/fission similaire au DIN.

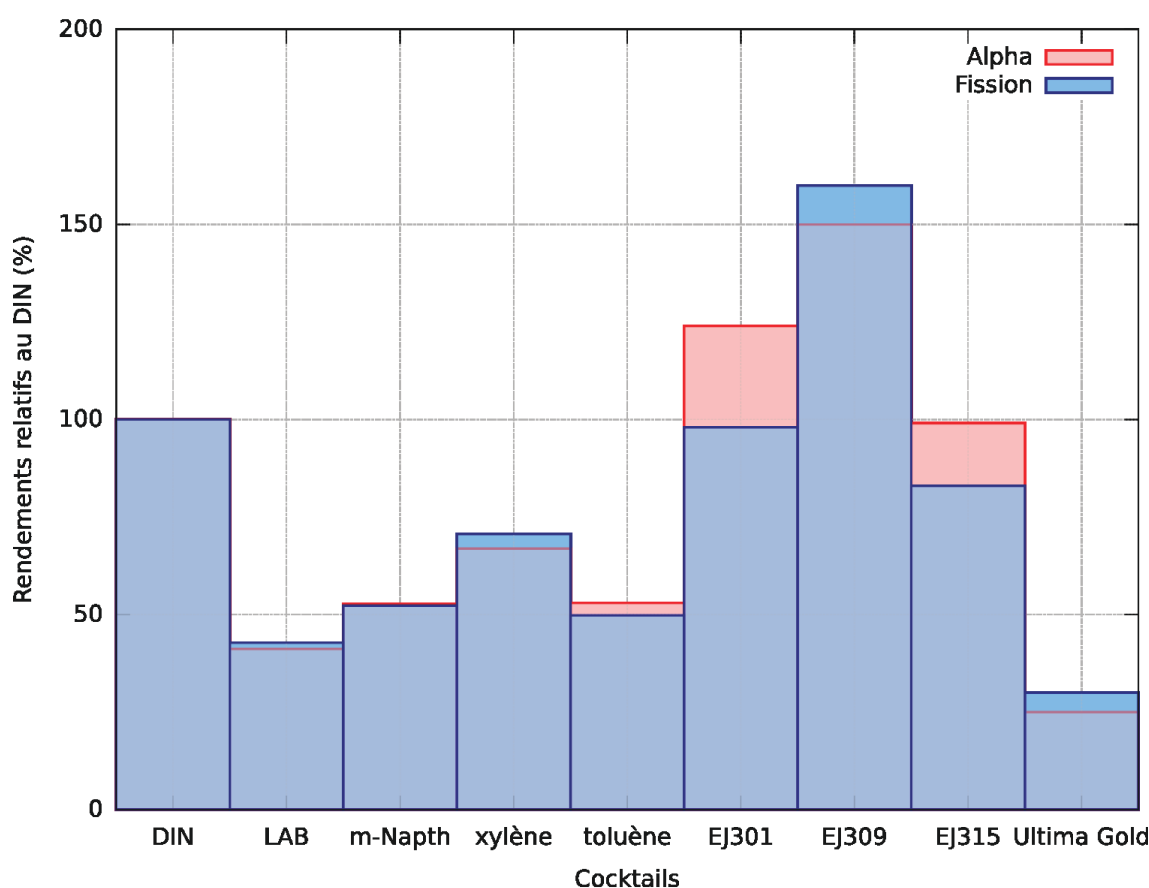


FIGURE 2.30 – Evolution des rendements en lumière relatifs au DIN pour la fission et les alphas pour les différents solvants étudiés.

Cette figure montre également que les cocktails présentant les meilleures PSD avec une bonne séparation proton/fission, le DIN et l'EJ-309, ont des rendements en lumière élevés. L'EJ-301 présente aussi une PSD correcte mais sans séparation proton/fission. Il semblerait que les cocktails ayant un rendement en lumière de fluorescence élevé aient de meilleures performances en PSD que les cocktails à faible rendement en lumière. Néanmoins, les cocktails ayant un meilleur rendement en lumière pour les fragments de fission que pour les alphas ne confirment pas cette hypothèse. La figure 2.31 représente l'évolution des rendements des fragments de fission par rapport aux alphas pour les cocktails étudiés. Les variations restent faibles mais la valeur la plus élevée est mesurée pour le cocktail Ultima Gold qui a une PSD médiocre. On peut citer l'EJ-301 qui a la valeur la plus faible et présente tout de même une meilleure PSD que les autres cocktails exceptés le DIN et l'EJ-309.

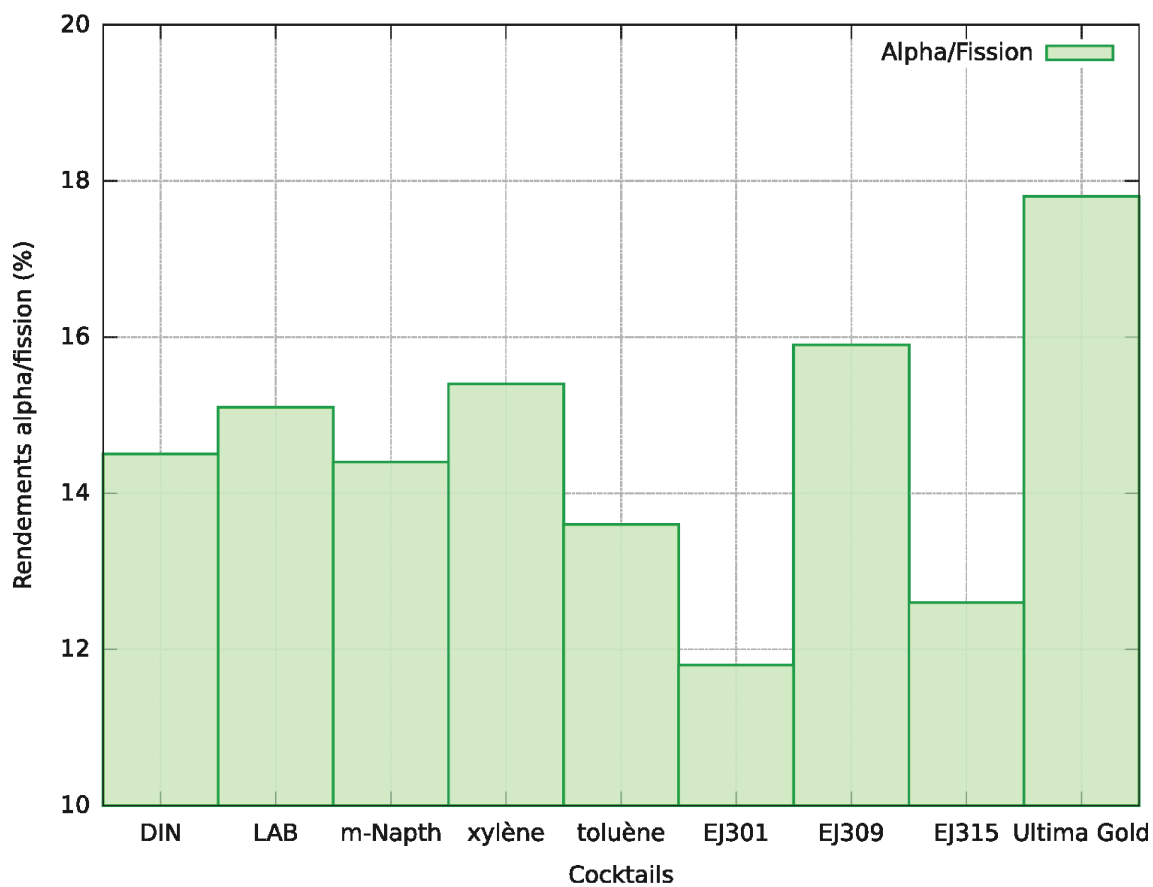


FIGURE 2.31 – Evolution du rapport des rendements en lumière alphas/fission pour les différents solvants étudiés.

## Les fluorophores

Comme nous l'avons expliqué, nous avons principalement utilisé du PPO, très soluble dans les solvants organiques, dans des concentrations comprises entre 0,044 g/L et 400 g/L nous permettant ainsi de faire varier sa concentration jusqu'à saturation dans le solvant. La figure 2.32 représente l'évolution des rendements en lumière des alphas et des fragments de fission, ainsi que du rapport des rendements fission/alpha en fonction de la concentration en PPO dans du toluène et du *para*-xylène.

Dans le toluène, on remarque une augmentation des rendements relatifs aux alphas et aux fragments de fission avec la concentration en PPO avec un maximum entre  $4 \text{ g L}^{-1}$  et  $10 \text{ g L}^{-1}$ . Les effets du quenching en concentration sont ensuite visibles avec une forte diminution de ces rendements, jusqu'à une diminution de l'ordre de 40% pour des concentrations supérieures à 100 g/L. Le rapport des rendements fission/alpha augmente faiblement en fonction de la concentration en PPO. Un maximum est observé pour  $4 \text{ g L}^{-1}$  avec un rapport de 14%. Le même comportement est observé dans le p-xylène. Les rendements en lumière relatifs au DIN sont maximaux pour une concentration en PPO de  $50 \text{ g L}^{-1}$  et diminuent fortement pour des concentrations supérieures. On n'observe plus de fluorescence avec  $400 \text{ g L}^{-1}$  de PPO. Le rapport des rendements fission/alpha suit le même comportement avec un maximum de l'ordre de 15% pour  $50 \text{ g L}^{-1}$  de PPO. Pour le PBBO, nous avons choisi d'utiliser uniquement de faibles concentrations ( $4 \text{ g L}^{-1}$ ) proches de l'optimum [12]. Les rendements en lumière sont sensiblement similaires à ceux obtenus avec du PPO en faible concentration.

Enfin, l'ajout de naphthalène dans des concentrations comprises entre  $50 \text{ g L}^{-1}$  et  $200 \text{ g L}^{-1}$  comme activateur de PSD n'a montré aucune amélioration significative de la séparation proton/fission ou de la PSD de manière générale.

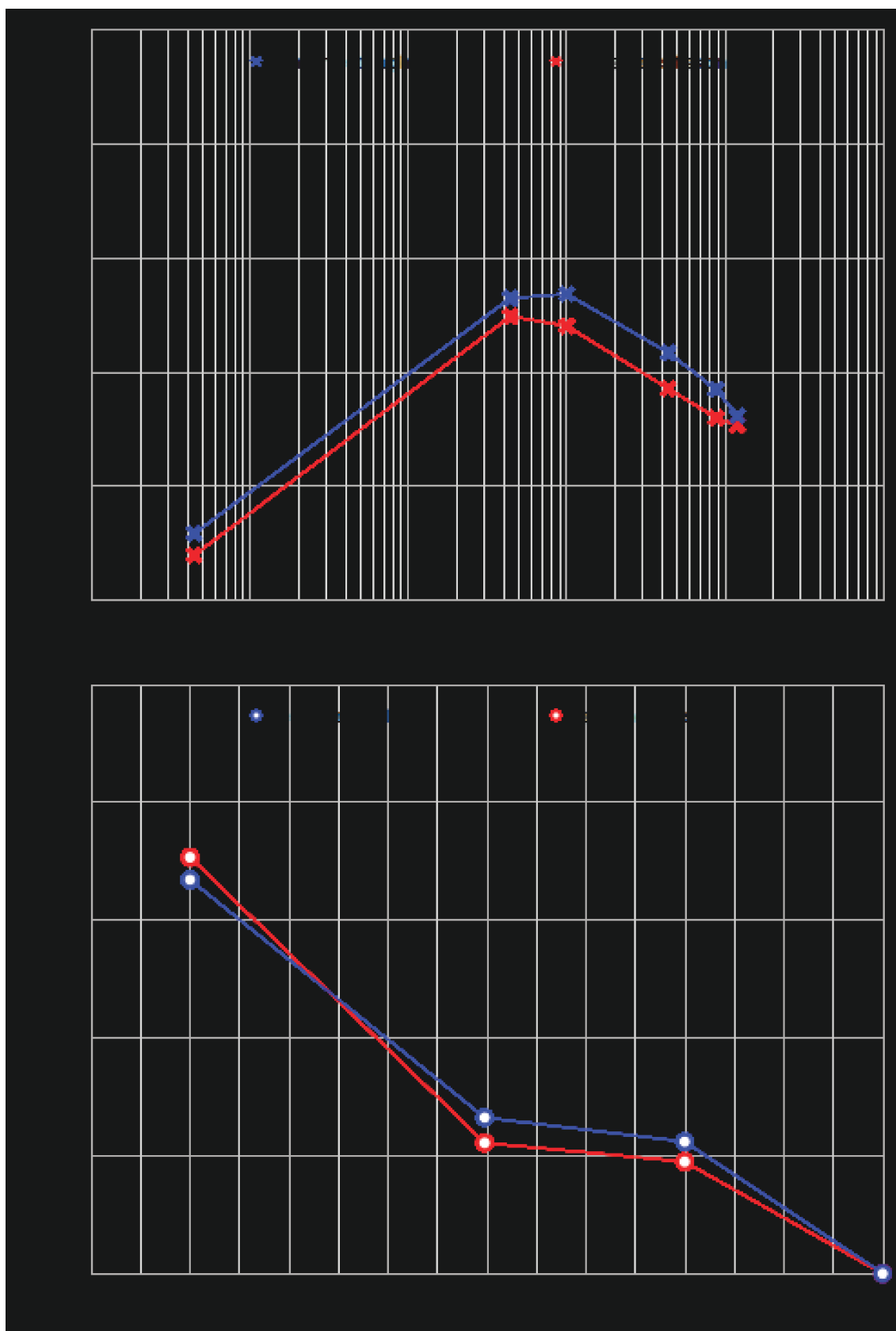


FIGURE 2.32 – Evolution des rendements relatifs au DIN pour la fission et les alphasen fonction de la concentration en PPO dans du toluène (haut) et du *para*-xylène (bas).

## 2.7.2 Les cocktails scintillants plastiques

### 2.7.2.1 Cocktails étudiés

Toujours dans l'optique d'obtenir un scintillateur capable d'accepter une masse d'actinide élevée et d'avoir une bonne PSD, nous avons également essayé de synthétiser des scintillateurs plastiques contenant un actinide et un fluorophore en concentration élevée. Les plastiques nous permettraient de nous affranchir des cellules en aluminium nécessaires avec les liquides ainsi que des problèmes d'évaporation de scintillateur. Ces tests ont été réalisés en collaboration avec M. Hamel (CEA/DRT/-LIST/DCSI/LCAE) suite à une étude préliminaire sur l'incorporation des actinides dans les plastiques réalisée avec des "fantômes" (zirconium et terbium).

Un premier lot de plastiques a été préparé avec du  $^{252}\text{Cf}$  afin de déterminer si la PSD et la séparation proton/fission étaient satisfaisantes. Un second lot de scintillateurs a été préparé ensuite avec du  $^{232}\text{Th}$  afin de doper les plastiques avec une quantité plus importante d'actinide.

Les actinides ont été extraits dans une phase organique liquide composée d'un monomère : du styrène ou du vinyltoluène. Après l'extraction, un ou deux fluorophores ont été rajoutés à la phase organique. Les fluorophores primaires et secondaires que nous avons utilisés sont le biphenyle, le POPOP, le p-terphenyle, le 4-isopropyl-biphenyle (abrv. 4-iPrBiph), le PPO et le DPA<sup>1</sup>. Enfin, du diméthacrylate de 1,4-butanediyle, un agent de réticulation accélérant la polymérisation du liquide, a été rajouté à la phase organique scintillante à hauteur de 12%vol. Le mélange final a été ensuite mis à l'étuve jusqu'à ce que la polymérisation soit terminée. Les différents plastiques réalisés et leur composition sont présentés dans le tableau 2.5, et des photos avant et après polymérisation sont présentées dans les annexes A.2 et A.3.

### 2.7.2.2 Plastiques dopés au $^{252}\text{Cf}$

La polymérisation des plastiques nous a posé des problèmes. Comme on peut le voir sur les figures A.2, A.4 et A.5 de l'annexe A.2, des dépôts blancs se sont formés à la surface ou dans les plastiques et certains ne sont pas complètement transparents. La polymérisation du mhaD132 donne un plastique transparent bleuté dont la scintillation est visible à l'œil nu. Il présente cependant une PSD médiocre avec une faible séparation entre les alphas et les betas, et un recouvrement complet des fissions par les protons.

Le plastique mhaD127 présenté sur la figure A.2 est bien transparent, Après retrait des dépôts formés autour du plastique, les mesures montrent que le mhaD127 a une PSD satisfaisante. Comme le montre l'histogramme de discrimination présenté sur la figure 2.33, la séparation entre les betas, les protons et les alphas est moins bonne que pour nos cocktails liquides mais les protons et les fragments de fission sont relativement séparés.

---

1. DPA : 9,10-diphénylanthracène



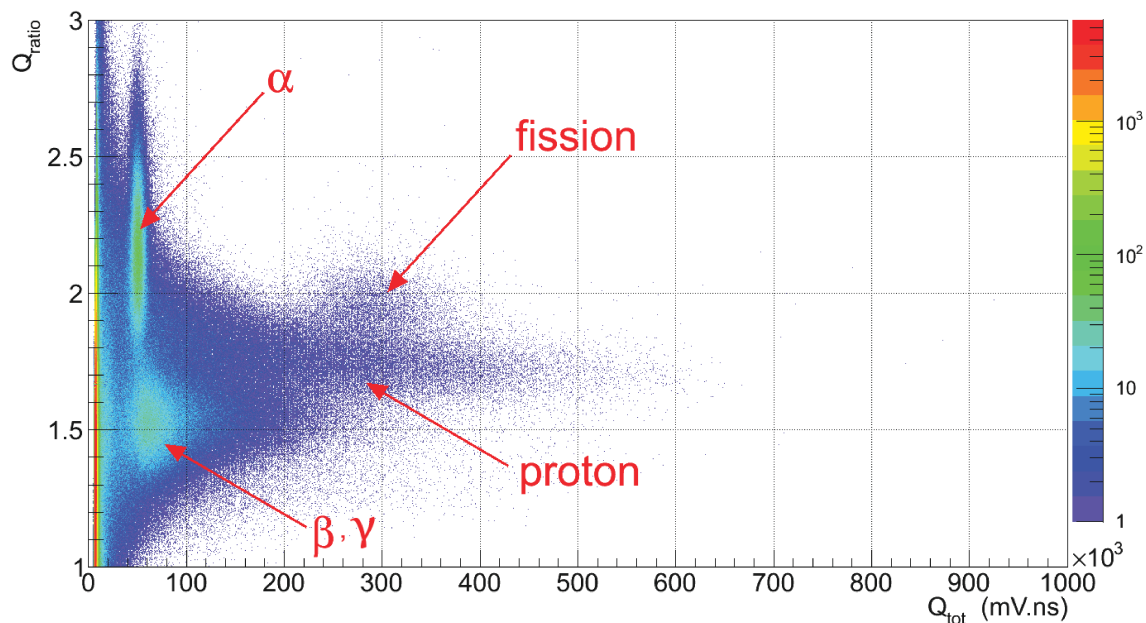


FIGURE 2.33 – Histogramme de discrimination du mhaD127 en présence d’une source de neutrons (Am-Be).

### 2.7.2.3 Plastiques dopés au $^{232}\text{Th}$

Avec l’incorporation de thorium, la polymérisation a également posé problème. Avec le plastique mhaD128 par exemple (cf. figure A.6), le thorium a précipité avant polymérisation lors de l’ajout des fluorophores et il présente une surface blanchâtre après polymérisation. Seuls 1,26 mg de thorium sont contenus dans le plastique par rapport aux 10 mg prévus lors de l’extraction. Le plastique mhaD137 (figure A.9), qui était translucide à l’état liquide, est devenu complètement opaque après polymérisation.

Enfin, tout comme sa version au californium (mhaD127), le plastique mhaD135 (figure A.7) présente des dépôts blancs ainsi qu’une surface blanchie. Le plastique mhaD137 (figure A.9), contenant les mêmes fluorophores mais un monomère différent (du vinyltoluène), était translucide à l’état liquide mais est blanchâtre avec des dépôts jaunes après polymérisation.

Nous avons donc obtenu un seul plastique scintillant avec une PSD satisfaisante, le mhaD127, mais qui reste nettement moins bonne que celle des scintillateurs liquides. Tous les essais de mise en solution de thorium se sont révélés infructueux, résultant en des plastiques contenant des dépôts blanchâtres ou jaunes et n’étant pas transparents. Pour le moment, il est donc impossible d’envisager une cible active scintillante à base de plastique dopé avec un actinide.

TABLE 2.5 – Composition des différents plastiques scintillants étudiés.

Nom	Monomère	Actinide	masse (mg)	Fluor #1	[C] (g/L)	Fluor #2	[C] (g/L)	Fluor #3	[C] (g/L)
mhaD126	styrène	$^{252}\text{Cf}$	–	biphényle	157,9	POPOP	0,9	–	–
mhaD127	styrène	$^{252}\text{Cf}$	–	PPO	276,8	DPA	1,7	–	–
mhaD128	styrène	$^{232}\text{Th}$	10	biphényle	153,8	POPOP	0,9	–	–
mhaD132	styrène	$^{252}\text{Cf}$	–	biphényle	153,8	POPOP	0,9	–	–
mhaD133	styrène	$^{252}\text{Cf}$	–	PPO	241,6	DPA	1,6	–	–
mhaD134	styrène	$^{252}\text{Cf}$	–	4-iPrBiph	87,1	p-terphényle	17,4	POPOP	0,9
mhaD135	styrène	$^{232}\text{Th}$	13	PPO	170,2	DPA	1,1	–	–
mhaD136	styrène	$^{232}\text{Th}$	13	4-iPrBiph	51,5	p-terphényle	11,3	POPOP	0,6
mhaD137	vinyltoluène	$^{232}\text{Th}$	13	PPO	157,8	DPA	1,0	–	–

### 2.7.3 Conclusion

Pour le moment aucun cocktail scintillant ne permet de combiner les avantages d'une bonne PSD avec séparation proton/fission et d'une bonne solubilité des actinides. Par ailleurs, ces mesures ne permettent pas de conclure sur la réponse des scintillateurs aux fragments de fission en fonction de leur composition. Nos recherches se sont basées sur un certain nombre de principes simples comme l'utilisation de solvants connus pour leurs bonnes propriétés et de différents fluorophores à différentes concentrations. Hélas, le comportement des scintillateurs pour la détection des fragments de fission ne suit pas de logique apparente : aucune anticipation ne peut être faite sur les bases des performances connues des scintillateurs pour des particules légères. L'exemple le plus flagrant est celui du scintillateur EJ-301, équivalent du NE213, qui est toujours le meilleur scintillateur en terme de discrimination neutron/gamma. Il s'est cependant montré décevant pour les fragments de fission. La surprise est venue du EJ-309, moins performant en discrimination neutron/gamma, et qui pourtant présente les meilleurs rendements en lumière due aux alphas et aux fragments de fission ainsi qu'une bonne séparation proton/fission. Ainsi, le développement d'un cocktail "idéal" devra passer par une compréhension plus théorique de la réponse aux fragments et de la solubilité des actinides dans les solvants organiques.

Toutefois il est d'ores et déjà possible d'utiliser ce type de cible active dans des conditions restreintes. A volume égal, l'Alphaex peut être utilisé pour des mesures de fission induite par neutrons nécessitant une masse d'actinide plus importante mais l'énergie des neutrons et les dimensions de la cellule scintillante doivent être restreintes pour éviter le recouvrement des événements de fission par les protons de recul. La discrimination protons/fissions peut être réalisée grâce à la charge totale pour des neutrons rapides d'énergie inférieure à 4 MeV. Comme le montre la figure 2.34, représentant le dépôt maximum d'énergie des protons de recul dans le scintillateur en fonction de l'énergie du neutron incident et pour des cellules de différentes épaisseurs, on peut s'affranchir de cette limite sur l'énergie en utilisant des cellules d'épaisseur inférieure ou égale à 100  $\mu\text{m}$ . Pour une telle épaisseur, le dépôt d'énergie des protons de recul sera toujours inférieur ou égal à 4 MeV pour des neutrons rapides d'énergie inférieure à 30 MeV. Pour une cellule de 2" de diamètre, cela correspond à un volume de 0,2 mL et permet de mettre en solution jusqu'à 10 mg d'uranium naturel. Le DIN et l'EJ-309 présentent une bonne PSD avec une bonne séparation proton/fission mais nous ne pouvons mettre en solution que de faibles masses d'actinides, de l'ordre du milligramme par millilitre. Il faudrait alors augmenter le volume de scintillateur ou le flux de neutrons, induisant une augmentation de l'empilement de signaux et des pertes de détection de la fission. Pour limiter ces effets et compenser la faible masse d'actinide, ils seront donc utilisés avec des neutrons thermiques où les sections efficaces de fission sont plus importantes. Enfin, un cocktail scintillant deutéré tel que le EJ-315 peut également être utilisé pour des mesures en fission induite par neutrons thermiques afin de réduire la quantité de captures radiatives de neutrons grâce à sa faible teneur en hydrogène.

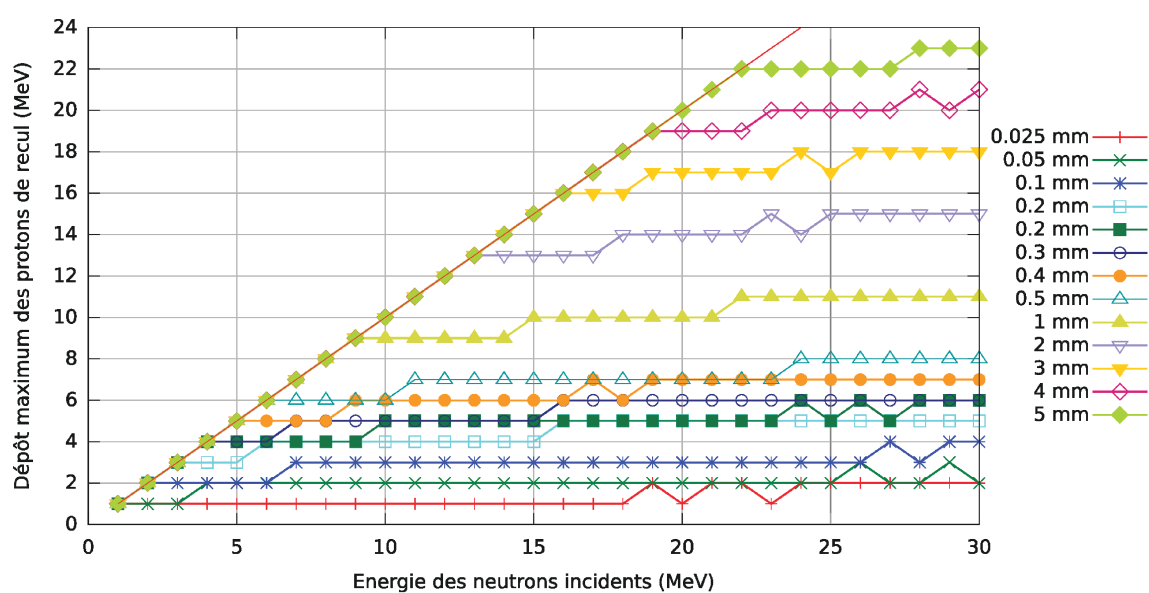


FIGURE 2.34 – Dépôt maximal d'énergie par les protons de recul en fonction de l'énergie du neutron incident dans le liquide scintillant pour différentes épaisseurs de cellules.

## 2.8 Etude de vieillissement

La robustesse d'un détecteur est un critère important. La cible active scintillante est destinée à des mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons ou des mesures nécessitant un trigger ou un veto fission très efficace. Ils peuvent être soumis à de fortes irradiations sous hauts flux de neutrons comme nous le verrons dans le chapitre 3 et à de forts taux de fissions dans leur volume actif pendant des durées importantes. Leur dégradation par radiolyse, due aux nombreux dépôts d'énergie provoqués par les fissions ayant lieu directement dans le volume actif du détecteur, n'a jamais été étudiée. C'est pourquoi nous avons entrepris une étude du vieillissement de certains cocktails dans des conditions "extrêmes" et avons mesuré l'évolution de leurs rendements en lumière au long de l'irradiation.

L'objectif de cette étude est double puisqu'elle permet, outre le vieillissement du scintillateur, d'étudier la possibilité d'utiliser la cible active scintillante lors de futures campagnes d'expériences EXILL<sup>1</sup> [13]. Ces expériences ont pour but d'étudier la structure des noyaux riches en neutrons produits lors d'une réaction de fission et d'étudier la fission grâce à un multi-détecteur sphérique constitué de cristaux de germanium (EXOGAM). De telles mesures nécessitent un trigger fission très efficace, rapide et pouvant être utilisé pendant de longues périodes de mesures sous faisceau de neutrons : la cible active scintillante pourrait ainsi être un candidat idéal.

Cette étude a été réalisée dans la casemate d'arrêt faisceau sur la ligne de neutrons du Neutrograph à l'Institut Laue-Langevin à Grenoble. Cette ligne fournit un faisceau collimaté de neutrons thermiques avec un flux atteignant  $3.10^9 \text{ n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ .

Quatre cocktails scintillants ont été étudiés : DIN, EJ-309, Alphaex, contenant respectivement 0,346 mg, 0,295 mg et 0,435 mg d'uranium 235, ainsi qu'un cocktail à base d'hexafluorobenzène ( $\text{C}_6\text{F}_6$ ) contenant 0,366 mg d'uranium 235. Ce dernier est particulièrement intéressant pour les expériences de structure nucléaire car sa faible teneur en hydrogène (1 atome pour 100 atomes de fluor) diminue fortement la quantité de captures radiatives sur l'hydrogène provenant de la cible. L'ensemble du dispositif est représenté schématiquement sur la figure 2.35. Chaque cellule scintillante est couplée optiquement à un tube photomultiplicateur Hamamatsu H10580 grâce à un guide optique (cf. paragraphe 2.2.2). Un bloc de plomb pur, d'épaisseur 5 cm, est placé devant les cibles actives dans le faisceau afin de réduire la quantité de rayonnements gammas provenant du réacteur. Un second bloc de plomb est placé après les cibles actives pour réduire la quantité de rayonnements gammas provenant du "beam dump", situé à environ 2 m des cibles actives. La casemate est tapissée de carbure de bore afin d'augmenter les captures de neutrons et ainsi diminuer la dégradation des mesures par des retours de neutrons. Enfin, les mesures ont été réalisées avec un module d'acquisition numérique FASTER.

Lors des phases d'irradiation les cibles actives sont placées au centre du faisceau. Le flux de neutrons a été mesuré par activation de feuilles d'or placées devant chaque cellule. Le taux de fission est ensuite calculé à partir de mesures de flux et de la mesure de la masse d'uranium présente dans la cellule scintillante effectuée avant l'irradiation. Les taux de fissions sont présentés dans le tableau 2.6.

L'évolution des scintillateurs a été caractérisée grâce à la détection de la fission

---

1. EXILL : EXOgam at the ILL

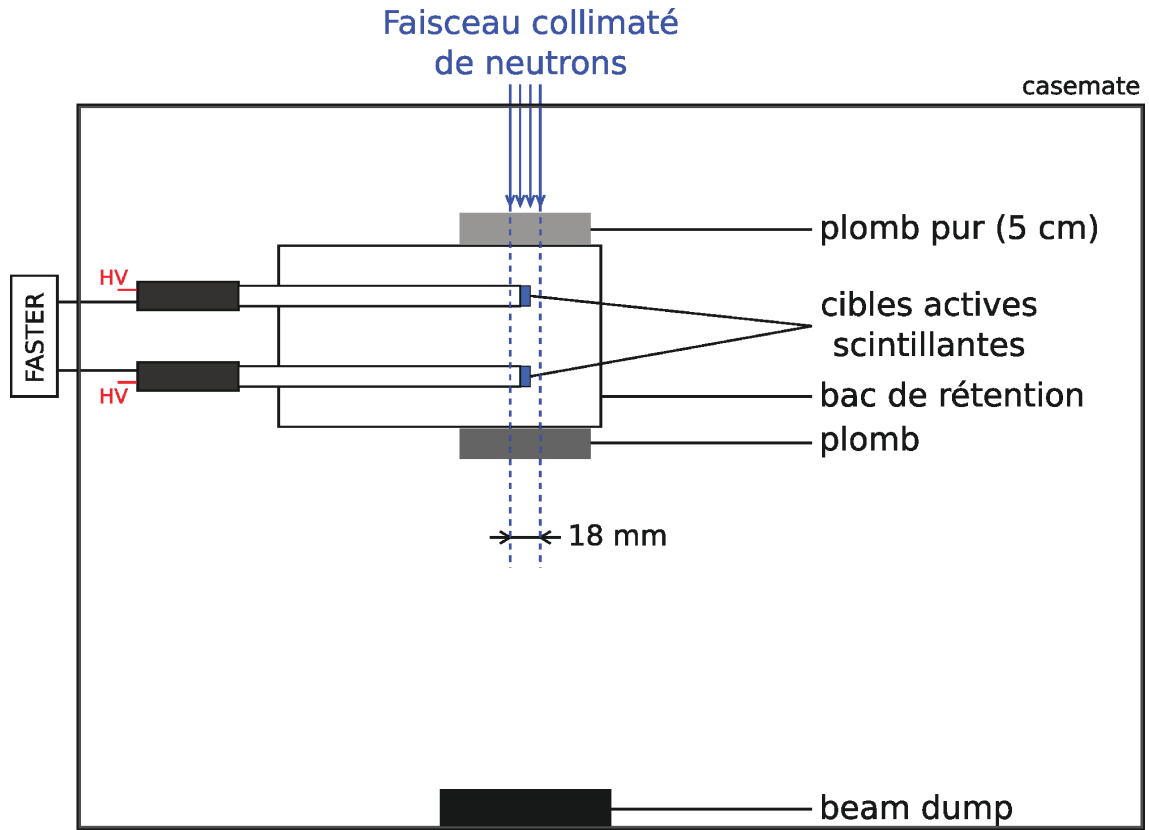


FIGURE 2.35 – Dispositif expérimental utilisé pour l'étude de vieillissement à l'ILL.

Cocktail	Taux de fission ( $\text{s}^{-1}$ )	masse $^{235}\text{U}$ ( mg )
DIN	$2,88 \cdot 10^5$	0,346
EJ309	$2,46 \cdot 10^5$	0,295
$\text{C}_6\text{F}_6$	$3,05 \cdot 10^5$	0,366
Alphaex	$3,62 \cdot 10^5$	0,435

TABLE 2.6 – Taux de fission estimés lors de l'irradiation des cibles actives.

dans l'histogramme de discrimination. Comme on peut le voir sur une mesure effectuée sur le DIN sur la figure 2.36, on peut facilement détecter les fissions et mesurer la position du centroïde de la bosse fission par projection sur la charge totale. On remarque par ailleurs que la PSD est fortement dégradée avec une faible séparation entre les fissions et les rayonnements gamma. Cela provient des conditions extrêmes de mesures car les cibles actives sont situées dans une salle d'arrêt du faisceau où l'ambiance gamma est très forte. Les futures mesures lors de la campagne EXILL auront lieu sur un faisceau de neutrons froids où il n'y pas une telle quantité de rayonnements gammas et la PSD sera alors bien meilleure.

Une première mesure de référence est effectuée en début d'irradiation pour chaque cocktail scintillant. Les mesures suivantes réalisées régulièrement au cours des irradiations nous permettent de mesurer l'écart relatif à cette référence, c'est à dire l'évolution du rendement en lumière.

Les résultats pour les quatre cocktails scintillants sont rassemblés sur la figure 2.37. L'axe des abscisses représente le nombre de fissions ayant eu lieu dans la cible

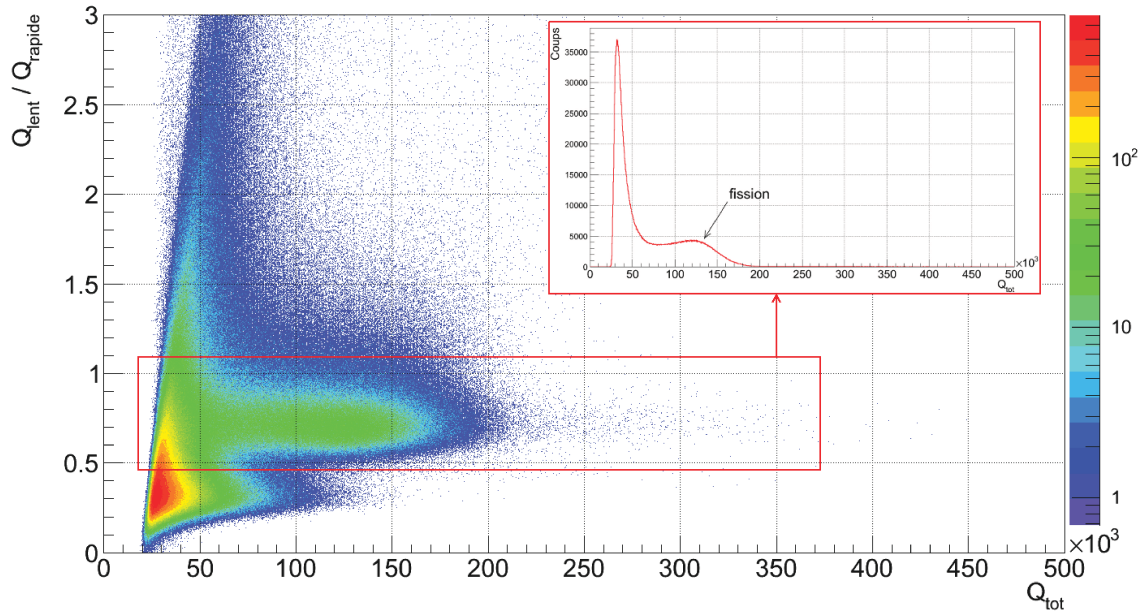


FIGURE 2.36 – Histogramme de discrimination des événements dans le DIN, mesure effectuée à 11 mm hors faisceau en début d’irradiation. Encart : projection sur la charge totale

active, l’axe des ordonnées représente le rendement en lumière des fragments de fission relatif au début de l’irradiation pour chaque cocktail scintillant.

On remarque trois tendances distinctes. L’EJ-309 ne présente pas de dégradation de son rendement en lumière qui reste constant sur toute la durée de l’irradiation. Pour le DIN, son rendement en lumière des fragments de fission diminue lentement, de 8,8% au bout de  $2,286 \cdot 10^{11}$  fissions.

Les cocktails Alphaex et  $C_6F_6$  montrent une forte diminution de leur rendement en lumière. Celui du  $C_6F_6$  diminue de 34,1% au bout de  $5,182 \cdot 10^{10}$  fissions, et celui de l’Alphaex diminue de 57,9% au bout de  $2,177 \cdot 10^{10}$  fissions. Ces deux cocktails étant très volatiles, une forte évaporation a également été observée lors de leur préparation avant les irradiations. Vingt-deux jours après leur fabrication, respectivement 42% et 65% du  $C_6F_6$  et de l’Alphaex s’étaient évaporés. Leur dégradation mesurée ici est très certainement amplifiée par cette forte évaporation.

Ces mesures de vieillissement montrent néanmoins la possibilité d’effectuer des mesures avec des taux de fissions importants dans le DIN ou l’EJ309 pendant plusieurs semaines sans dégradation impactant les performances de trigger ou de veto fission de la cible active scintillante.

## 2.9 Conclusions

Pour conclure, nous avons développé et caractérisé un détecteur pour l’étude de la fission tirant parti des avantages de la scintillation liquide organique. La mise en solution des actinides dans un scintillateur organique par extraction liquide-liquide permet la fabrication simple et rapide d’un détecteur permettant de combiner différentes mesures. La présence de l’actinide dans le volume actif du détecteur lui confère des efficacités de détection des alphas et des fragments de fission très élevées et d’une grande précision.

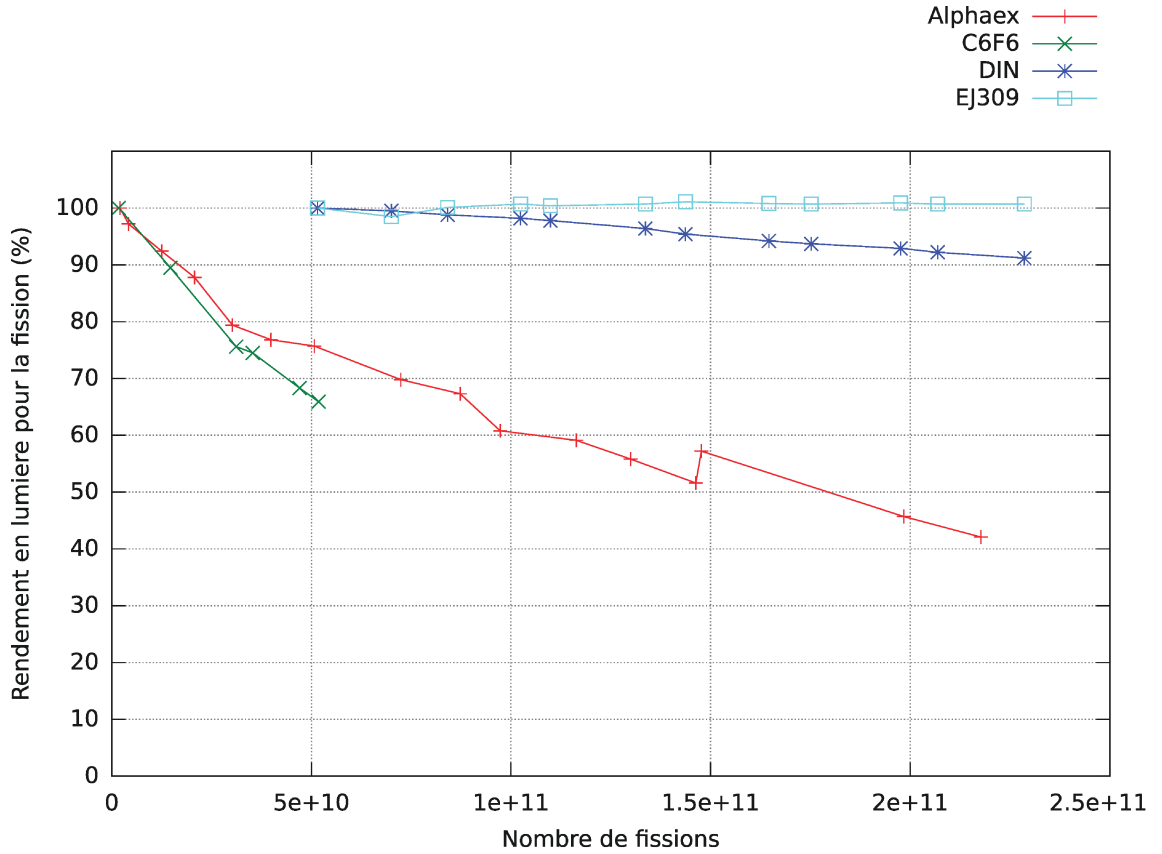


FIGURE 2.37 – Evolution du rendement en lumière des fragments de fission relatif au début de l'irradiation pour différents cocktails scintillants : Alphaex, C<sub>6</sub>F<sub>6</sub>, DIN et EJ309.

Combinées aux possibilités de PSD des scintillateurs organiques, les faibles pertes de comptage permettent d'effectuer une pesée nucléaire précise de l'actinide étudié grâce au comptage des décroissances alphas. Un comptage très précis des fissions peut également être réalisé, permettant à la cible active d'être utilisée comme trigger fission ou comme veto fission. Enfin, le comptage des protons de recul pourrait également être effectué afin de mesurer le flux de neutrons directement là où ont lieu les réactions étudiées, minimisant ainsi les sources d'incertitudes.

Compte-tenu de sa bonne résistance aux radiations, la cible active peut être utilisée lors d'expériences nécessitant de longues périodes d'irradiation ou de forts taux de fission. Ce détecteur possède tout de même des limites liées à la séparation proton/fission et à la solubilité des actinides dans les liquides organiques. La mauvaise séparation des protons et des fissions avec l'Alphaex contraint son utilisation sous faisceau de neutrons à des énergies inférieure à 4 MeV et une épaisseur maximale de 100  $\mu\text{m}$  de liquide. La faible concentration en actinide dans le DIN et l'EJ-309 nous contraint également à les utiliser avec des neutrons de basse énergie afin de limiter les effets de l'empilement.

La cible active scintillante peut néanmoins être utilisée comme trigger pour des mesures de sections efficaces de fissions induites par neutrons (cf. chapitre 3), pour des mesures de taux de fission spontanée ou encore comme trigger pour des mesures de spectrométrie gamma des fragments de fission.







# Chapitre 3

## Mesure de section efficace de fission

### 3.1 Motivations

Dans ce premier exemple d'application de la cible active, nous allons nous intéresser à la mesure d'une section efficace de fission induite par neutrons. Bien que ces mesures soient couramment réalisées avec des détecteurs tels que des chambres à fission, certains cas particuliers peuvent poser problème, notamment lors de la préparation de l'échantillon.

C'est le cas par exemple de l'isomère de l' $^{235m}\text{U}$ , premier état excité de l'uranium 235 d'énergie 77 eV et de demi-vie de l'ordre de 26 minutes. Il peut être produit par décroissance alpha du plutonium 239, de demi-vie 24100 ans. On note ainsi trois contraintes majeures pour la réalisation de mesures avec cet isomère. Tout d'abord, sa faible durée de vie nécessite une préparation de l'échantillon la plus rapide possible. Ensuite, il faut atteindre un facteur de séparation très élevé, de l'ordre de  $10^{12}$ , afin d'obtenir un échantillon suffisamment pur contenant quelques nanogrammes d'isomère. Enfin, ces faibles quantités nécessitent une installation capable de délivrer un haut flux de neutrons afin de mesurer une section efficace avec des incertitudes satisfaisantes. Etant donné toutes ces contraintes, peu de données existent aujourd'hui sur la section efficace de fission de cet isomère qui n'a été mesurée que pour des neutrons thermiques.

*Talbert et al.* [91] ont effectué différentes mesures avec une source de neutrons chauds, d'énergie la plus probable 75,5 meV, grâce à des chambres à fission contenant de 25 pg à 145 pg d' $^{235m}\text{U}$ . Ils rapportent une valeur du rapport de la section efficace de fission de l'isomère sur celle de l'état fondamental de  $R = 1,42 \pm 0,44$ .

*D'Eer et al.* [27] ont également mesuré ce rapport avec des neutrons froids d'énergie la plus probable 5 meV, ainsi que des neutrons chauds d'énergie la plus probable 56 meV, avec une cible contenant 2,3 pg d' $^{235m}\text{U}$  dont les fissions étaient détectées grâce à des détecteurs silicium. Ils mesurent respectivement  $R = 1,61 \pm 0,44$  et  $R = 2,47 \pm 0,45$  pour la fission induite par neutrons froids et chauds.

Ces deux mesures en neutrons thermiques donnent une section efficace de fission de l'isomère bien supérieure à celle de l'état fondamental. Plus récemment, des calculs théoriques réalisés par *Lynn et al.* [59] prédisent des sections efficaces de

fission induite par neutrons pour différents actinides dont les états fondamental et isomérique de l' $^{235}\text{U}$ . La figure 3.1 représente le rapport entre la section efficace de fission de l'isomère sur celle de l'état fondamental de l' $^{235}\text{U}$  en fonction de l'énergie du neutron incident, calculé selon différentes paramétrisations des barrières de fission. La tendance générale observée est une section efficace de l'isomère jusqu'à 50% plus faible que l'état stable pour des énergies de neutrons entre 0 et 0,5 MeV, et des sections efficaces sensiblement identiques au-delà de 1 MeV. Ces prédictions ne sont pas en accord avec les mesures présentées précédemment.

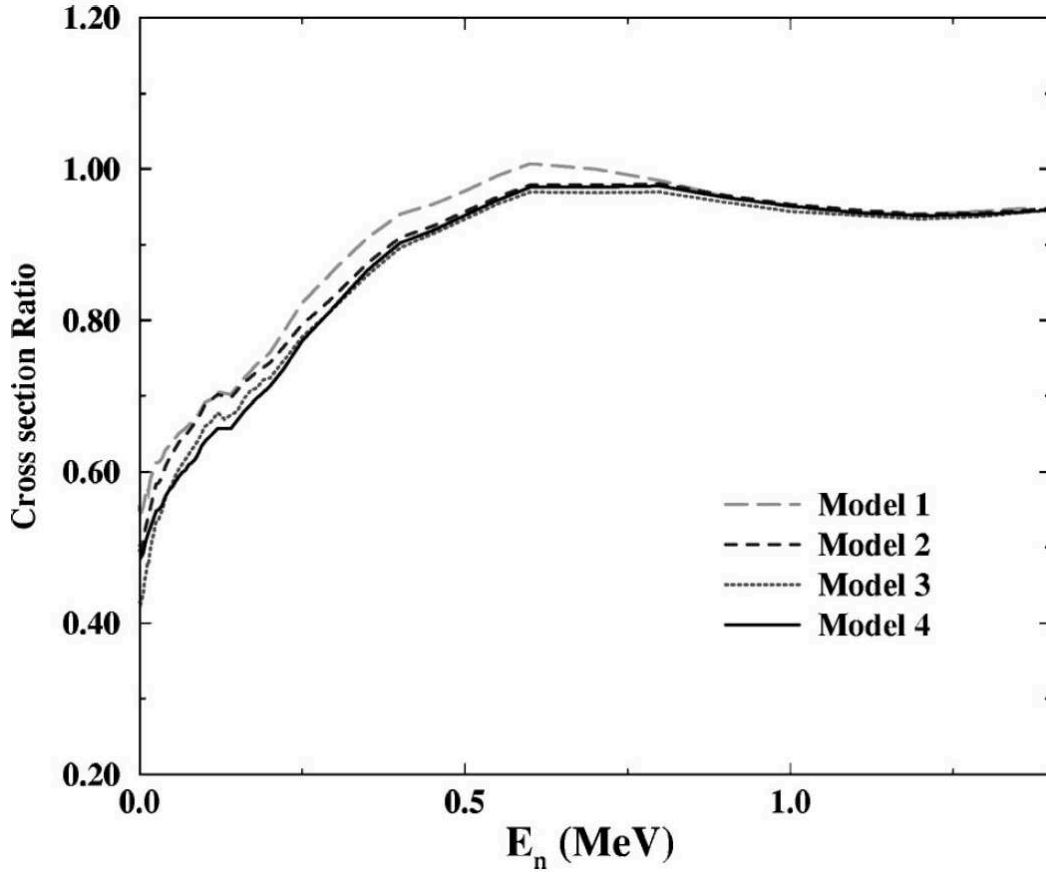


FIGURE 3.1 – Rapport des sections efficaces de fission induite par neutron de l' $^{235m}\text{U}$  sur l' $^{235}\text{U}$ . Figure extraite de la référence [59].

Or, il s'avère que cet état isomérique est fortement peuplé via des réactions de diffusion inélastique, notamment pour des énergies de neutrons inférieures à 5 MeV. La figure 3.2 représente le rapport de peuplement de l'état isomérique par rapport à l'état fondamental de l' $^{235}\text{U}$  pour de telles réactions, en fonction de l'énergie du neutron incident. Ces calculs réalisés par *Younes et al.* [102] sont issus du code GNASH [103] et comparés à différentes mesures réalisées avec le spectromètre GEANIE<sup>1</sup>. La section efficace de peuplement de l'isomère est au moins de l'ordre de 50% de celle de l'état fondamental en dessous de 5 MeV. On peut également citer la mesure intégrale de la section efficace totale de réaction  $^{235}\text{U}(n, n')^{235m}\text{U}$  par G. Bélier et al. [8] qui conforte les données précédentes. Les auteurs rapportent une valeur de  $\sigma = 1,00 \pm 0,13$  b pour un spectre de neutrons piqué à 0,5 MeV, que l'on peut comparer à la section efficace de fission de l'uranium 235 de l'ordre du barn à ces

1. GEANIE : GERmanium Array for Neutron Induced Excitations

énergies là. Ainsi, sous hauts flux de neutrons, cet isomère est formé en quantité non négligeable.

Des mesures expérimentales de sa section efficace de fission sont nécessaires afin de valider ou non les modèles théoriques permettant de déterminer des sections efficaces de fission d'états excités, et ainsi de fournir des données aux applications.

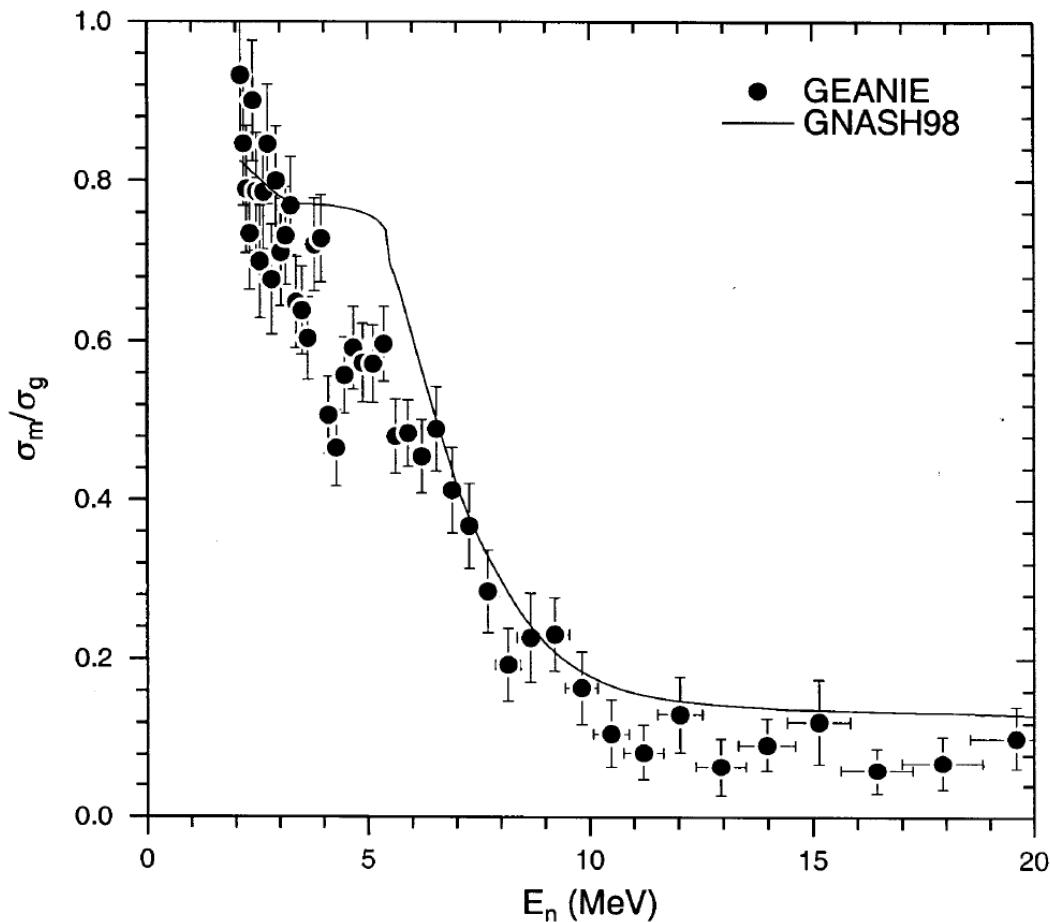


FIGURE 3.2 – Rapport de peuplement par diffusions inélastiques de l'état isomérique par rapport à l'état fondamental de l' $^{235}\text{U}$  en fonction de l'énergie du neutron incident. Figure extraite de la référence [102].

Actuellement, le LSDS<sup>1</sup> installé au sein du WNR<sup>1</sup> au Los Alamos National Laboratory, présenté dans la section 3.2.2, permet la mesure de sections efficaces de fission sur de très faibles quantités de matière, typiquement de l'ordre de la dizaine de nanogrammes [65], dans une gamme en énergie comprise entre 0,1 eV et 100 keV. Cette mesure a d'ailleurs déjà été tentée sur cette installation par le passé. Un échantillon d' $^{235m}\text{U}$  a été préparé à partir d'une solution mère de 20 g de  $^{239}\text{Pu}$ . La séparation de l'isomère a été réalisée grâce à plusieurs extractions en colonnes basées sur une technique d'échange anionique. Les isotopes, contenus dans une solution d'acide hydrobromique, transitent dans une colonne contenant une résine absorbant l'uranium. L'uranium peut ensuite être remis en solution et l'étape de séparation répétée autant que nécessaire pour atteindre la pureté souhaitée. La solution finale est ensuite

1. LSDS : Lead Slowing Down Spectrometer

1. WNR : Weapons Neutron Research facility

électro-déposée sur une plaque de platine. Ces efforts se sont avérés infructueux car le facteur de séparation atteint n'a pas été suffisant à cause de la saturation des colonnes en plutonium et le rendement de séparation était trop faible. La faible pureté de l'échantillon fabriqué n'a pas permis d'effectuer des mesures de la section efficace de fission de l'isomère.

Afin de surmonter les contraintes liées à la séparation chimique, nous avons proposé l'utilisation de la cible active scintillante. Bien que plusieurs extractions successives soient toujours nécessaires pour atteindre un tel facteur de séparation, cette méthode a l'avantage de fonctionner avec des solutions mères à forte concentration en actinides, et d'être moins sujette à la saturation que les colonnes de séparation classiques. De plus, la dernière séparation et la préparation de l'échantillon sous forme de détecteur sont effectuées en une même étape, réduisant ainsi le temps nécessaire à la préparation de l'échantillon. Néanmoins, la faisabilité d'une séparation chimique avec un facteur  $10^{12}$  ainsi que d'une mesure de section efficace dans un environnement tel que le LSDS avec la cible active scintillante reste encore à démontrer.

Au préalable, nous avons voulu étudier de faisabilité de la mesure de section efficace de fission sur le LSDS avec une cible active scintillante.

## 3.2 Dispositif expérimental

### 3.2.1 La source de neutrons du LANSCE

L'accélérateur linéaire du LANSCE à Los Alamos fournit un faisceau pulsé de protons de 800 MeV, d'intensité maximale 100  $\mu$ A, qui peut ensuite être envoyé dans différentes installations : le Manuel Lujan Neutron Scattering Center (ou Lujan Center) et le WNR, respectivement en rose et en bleu sur la figure 3.3. Dans chacune de ces installations, le faisceau de protons frappe une cible de tungstène afin de produire des neutrons par réaction de spallation. Le Lujan Center permet de travailler avec des neutrons d'énergie comprise entre 1 eV et 500 keV grâce à la présence de modérateurs. Sur WNR, nous avons accès à des neutrons d'énergie comprise entre la dizaine de kilo électronvolts et la centaine de méga électronvolts dont le flux en fonction de leur énergie est représenté sur la figure 3.4. Il s'agit du flux de neutrons en fonction de leur énergie sur les différentes faces de la cible cylindrique de spallation en tungstène, typique d'un spectre de neutrons de spallation avec un flux maximal entre 1 et 2 MeV.

L'accélérateur délivre le faisceau de protons sous forme de micro-impulsions regroupées en macro-impulsions de fréquence 60 Hz pour un courant allant jusqu'à 100  $\mu$ A. Deux modes de fonctionnement sont disponibles. Le premier mode, que nous appellerons LINAC par la suite, consiste à envoyer le faisceau produit par l'accélérateur directement sur la cible de tungstène. Le second mode nommé PSR, acronyme pour *Proton Storage Ring*, permet d'augmenter l'intensité du faisceau. Il utilise un anneau de stockage des protons qui compresse les micro impulsions afin d'obtenir une seule micro-impulsion par macro-impulsion.

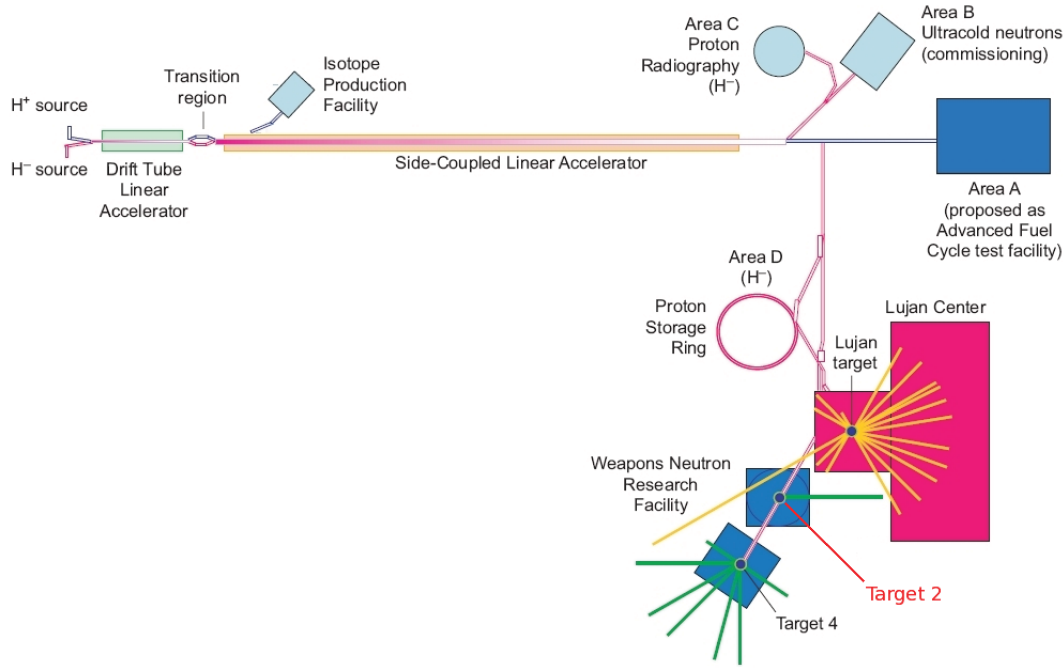


FIGURE 3.3 – Schéma des différentes installations du LANSCE : l'accélérateur fournit un faisceau de protons de 800 MeV qui peut être envoyé sur différentes cibles dont celles de WNR (en bleu) et notamment dans la *Blue Room* ou *Target 2* où est installé le LSDS.

### 3.2.2 Le Lead Slowing Down Spectrometer

Installé au sein de WNR à Los Alamos, dans une salle d'expérience appelée *Target 2* ou *Blue Room* (cf. figure 3.3), le LSDS est un spectromètre neutronique à ralentissement au plomb, constitué d'un massif de plomb de pureté supérieure à 99,99% en masse, divisé en 36 blocs de dimensions  $40 \times 40 \times 30 \text{ cm}^3$  pour une masse totale de 19,5 tonnes comme présenté sur la figure 3.5. Un canal destiné au passage du faisceau de protons est présent au centre du cube, à l'intérieur duquel une cible épaisse de tungstène est installée. Des canaux d'irradiation sont également aménagés dans les blocs afin de pouvoir y insérer les détecteurs et les échantillons.

Le fonctionnement du LSDS est basé sur des propriétés intéressantes du plomb vis à vis des neutrons. En effet, le premier état excité du  $^{208}\text{Pb}$  se situe à 2,614 MeV donc l'interaction des neutrons d'énergie inférieure à 2,614 MeV est régie par les diffusions élastiques et les réactions de capture. Les neutrons produits par spallation vont ainsi entrer dans le massif de plomb et, du fait de la faible section efficace de capture comparée à la section efficace de diffusion, subir de nombreuses diffusions successives et rester majoritairement confinés dans le massif pendant plusieurs centaines de microsecondes. Il s'agit là du premier avantage du LSDS. Le flux initial de neutrons produits par réaction de spallation est augmenté grâce au confinement et aux multi-diffusions des neutrons. On peut ainsi gagner jusqu'à quatre ordres de grandeurs par rapport à un faisceau de neutrons classiques dont le flux diminue en  $1/r^2$  en fonction de la distance  $r$  à la source de production.

Par ailleurs, la quantité d'énergie perdue par le neutron à chaque diffusion est très faible du fait de la masse élevée du plomb, au maximum  $\sim 3\%$  de son énergie initiale. On peut relier la perte d'énergie du neutron au nombre de diffusions qu'il

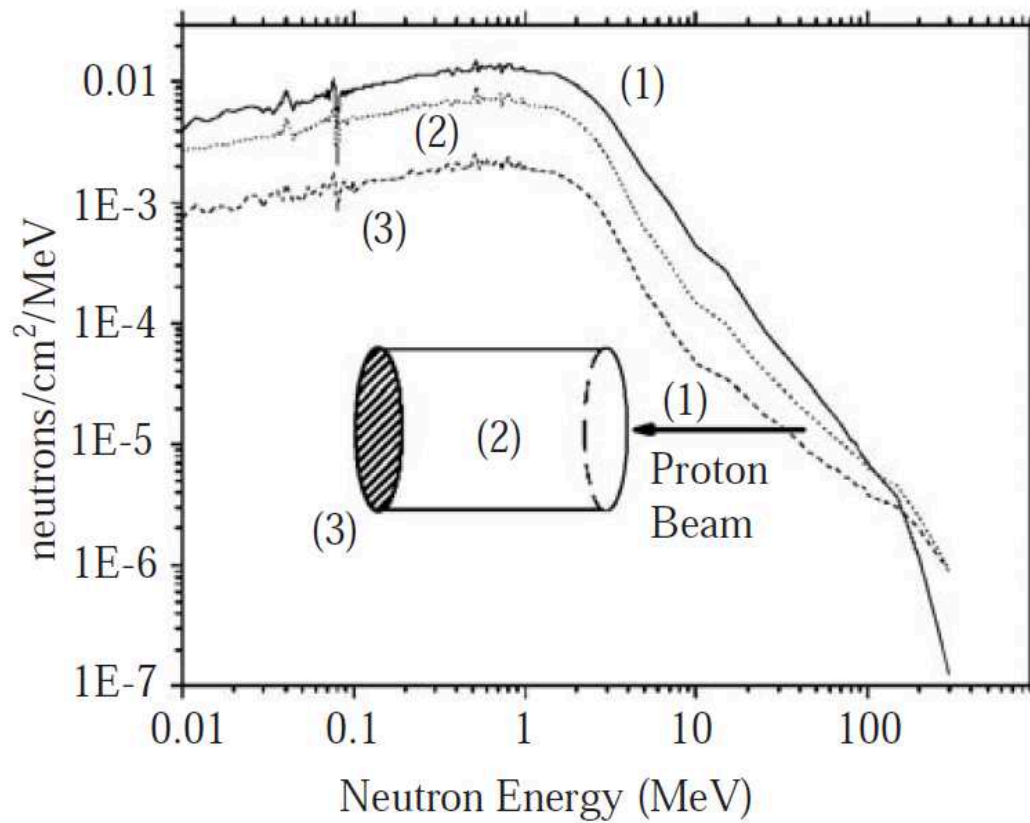


FIGURE 3.4 – Flux de neutrons en fonction de l'énergie des neutrons sur les différentes faces de cible de spallation en tungstène de WNR, un cylindre de diamètre 5 cm et de hauteur 25 cm. Figure extraite de la référence [83].

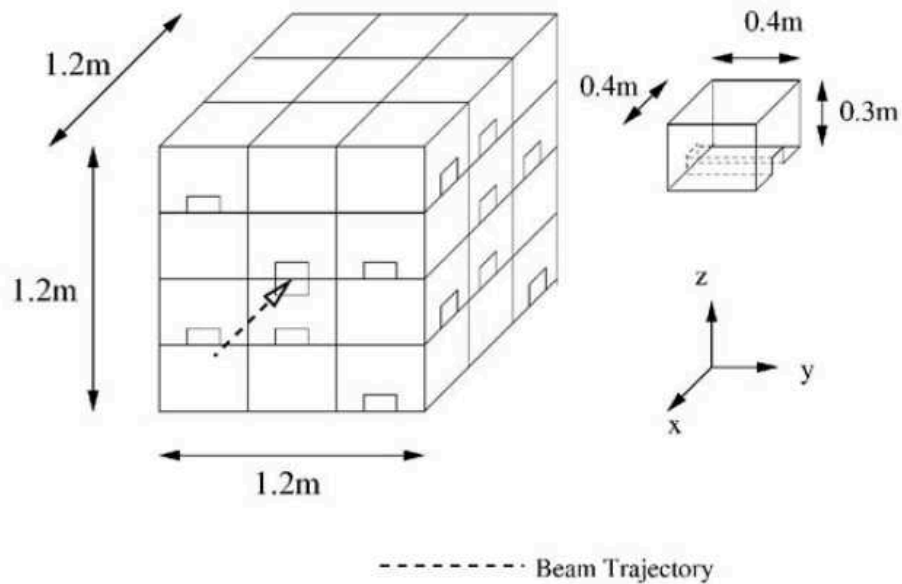


FIGURE 3.5 – Schéma du massif de plomb installé au WNR. Figure extraite de la référence [83].

a subit. Il existe alors une corrélation statistique entre l'énergie du neutron et son



temps de diffusion dans le massif de plomb [18] :

$$\bar{t} = \frac{1}{\Sigma_s \eta} \cdot \left( \sqrt{\frac{m}{2E}} - \sqrt{\frac{m}{2E_0}} \right) \quad (3.1)$$

où  $\Sigma_s$  est la section efficace de diffusion du neutron,  $\eta$  est un paramètre relié à la masse atomique du milieu traversé,  $m$  est la masse du neutron et  $E_0$  l'énergie initiale du neutron.

Dans la cas du LSDS, différentes mesures et simulations MCNPX réalisées par D. Rochman et al. [83] ont permis de caractériser cette relation afin de pouvoir calculer l'énergie moyenne des neutrons en fonction de leur temps de diffusion :

$$\bar{E}(t_d) = \frac{K}{(t_d + t_0)^2} \quad (3.2)$$

avec  $K = 161 \pm 1 \text{ keV}\mu\text{s}^2$  et  $t_0 = 0,37 \pm 0,15 \mu\text{s}$ .

Ainsi lors de mesures de sections efficaces de fission, la référence en temps donnée par l'évènement de fission nous permet d'accéder à l'énergie du neutron ayant induit la fission avec une résolution en énergie inférieure à 50% entre 1 eV et 100 keV, et présentant un minimum de l'ordre de 25% entre 10 eV et 100 eV.

### 3.2.3 Les cibles actives scintillantes

Pour ces mesures de faisabilité, nous avons utilisé deux cibles actives scintillantes, contenant de l' $^{235}\text{U}$ , de volume 6  $\mu\text{L}$ . Chaque cellule consiste en une petite cellule en aluminium sur laquelle est collé un hublot en quartz grâce à une colle optique. Une première cellule contient un scintillateur basé sur du DIN dans lequel 22  $\mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$  ont été dissous. Une deuxième cellule contient un cocktail à base d'EJ-309 contenant 4,5  $\mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$ . Chaque cellule est couplée à un tube photomultiplicateur Hamamatsu H10580. Le couplage optique est réalisé grâce à un guide de lumière constitué de deux tubes en titane formant un coude de 20°, de longueur totale 60 cm, et dont l'intérieur est recouvert de feuilles réfléchissantes 3M DF2000MA, cf. figure 3.6. La cible active scintillante est fixée dans un bouchon, à l'aide de scotch double face, positionné à une extrémité du guide. Le tube photomultiplicateur est fixé à l'autre extrémité du guide grâce à une bague d'adaptation.

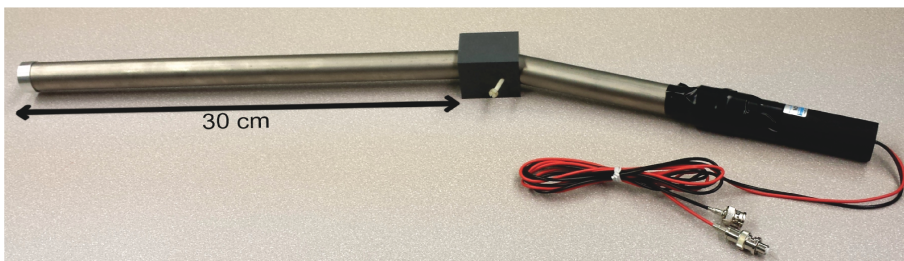


FIGURE 3.6 – Cible active scintillante couplée à un tube photomultiplicateur H10580 via un guide optique en titane coudé de 20°.

L'intérêt de tels guides optiques est de déporter les tubes photomultiplicateurs à l'extérieur du cube de plomb, ainsi que de l'axe du canal d'irradiation au sein desquels les cibles sont placées. Cela permet ainsi de limiter l'aveuglement des tubes

photomultiplicateurs par les gammas produits en masse lors de la réaction de spallation entre les protons et le tungstène.

Chaque cible active a été préparée et vérifiée à Bruyères le Châtel. Les figures 3.7 représentent un spectre en énergie non calibré de la décroissance alpha de l' $^{235}\text{U}$ , à droite pour la cellule DIN et à gauche pour la cellule EJ-309, mesurés à Bruyères le Châtel. Dans chaque scintillateur, on peut clairement remarquer un pic correspondant à un dépôt total de l'énergie de l'alpha, ainsi que des dépôts partiels à plus basse énergie correspondant à des effets de bords importants dans ce cas du fait de la petite taille de la cellule.

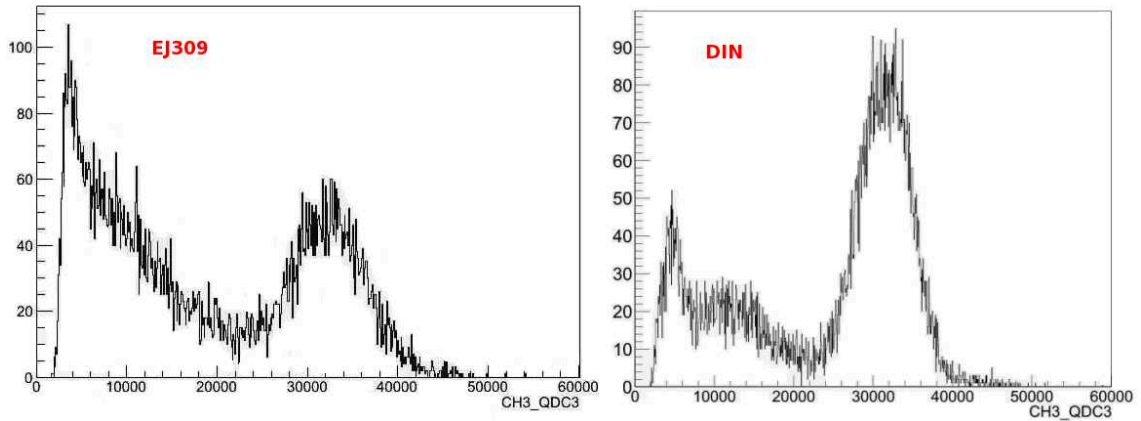


FIGURE 3.7 – Spectres en énergie non calibrés de la décroissance alpha de l' $^{235}\text{U}$  dans de l'EJ-309 (à gauche) et du DIN (à droite), après la fabrication des cibles actives.

Ces mêmes tests ont été effectués à Los Alamos avant les mesures sur le LSDS et sont représentés sur la figure 3.8. Les pics pleine énergie des alphas de l' $^{235}\text{U}$  n'apparaissent plus dans ces spectres. Seuls les dépôts partiels dus aux effets de bord sont toujours présents. Cela signifie que le volume de scintillateur est trop faible pour que les alphas déposent toute leur énergie. De toute évidence, nous avons eu un problème d'évaporation du solvant. Il s'agit là d'un premier problème qui dégrade la mesure sur le LSDS et qui semble venir de l'absence de peinture réfléchissante dans la cellule.

### 3.2.4 Système d'acquisition et traitement des données

Les mesures ont été effectuées avec un module d'acquisition numérique FASTER. Les signaux d'anode des deux tubes photomultiplicateurs ainsi que la référence en temps fournie par le faisceau ont été échantillonnés puis traités en temps réel. Ce traitement permet d'horodater les données et d'extraire les charges nécessaires à la discrimination de forme. Cette discrimination de forme des signaux des cibles actives nous permet ensuite d'identifier et de compter les événements de fission.

Nous pouvons également accéder à l'énergie du neutron ayant induit la fission par la mesure du temps de diffusion du neutron grâce à l'horodatage des événements :

$$t_d = t_{\text{scintillateur}} - t_{\text{faisceau}}$$

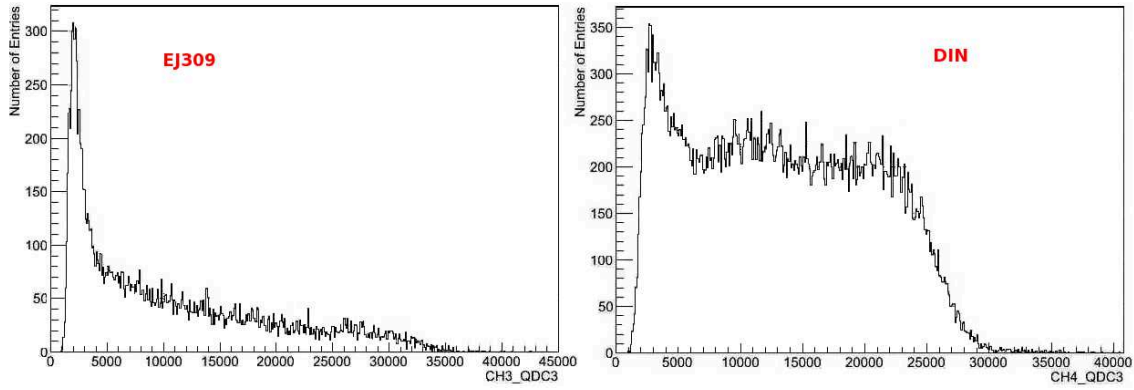


FIGURE 3.8 – Spectres en énergie non calibrés de la décroissance alpha de l' $^{235}\text{U}$  dans de l'EJ-309 (à gauche) et du DIN (à droite), avant les mesures sur le LSDS.

L'énergie du neutron est calculée selon la relation 3.2. Plus le temps de diffusion est faible, plus l'énergie du neutron ayant induit la fission est élevée.

### 3.3 Résultats

#### 3.3.1 Pour le mode LINAC

Les figures 3.9 et 3.10 représentent les histogrammes bidimensionnels de discrimination des événements dans nos cibles actives, respectivement pour le DIN et l'EJ-309, en mode LINAC. La fréquence des macro-impulsions était de 40 Hz. Ces dernières contenaient deux micro-impulsions de largeur 50 ns espacées de 216  $\mu\text{s}$ . L'axe des abscisses correspond à la charge totale du signal, proportionnelle à l'énergie déposée par la particule dans le scintillateur. L'axe des ordonnées correspond au ratio des charges lente sur rapide des signaux, plus élevé dans le cas des fragments de fission que des gammas.

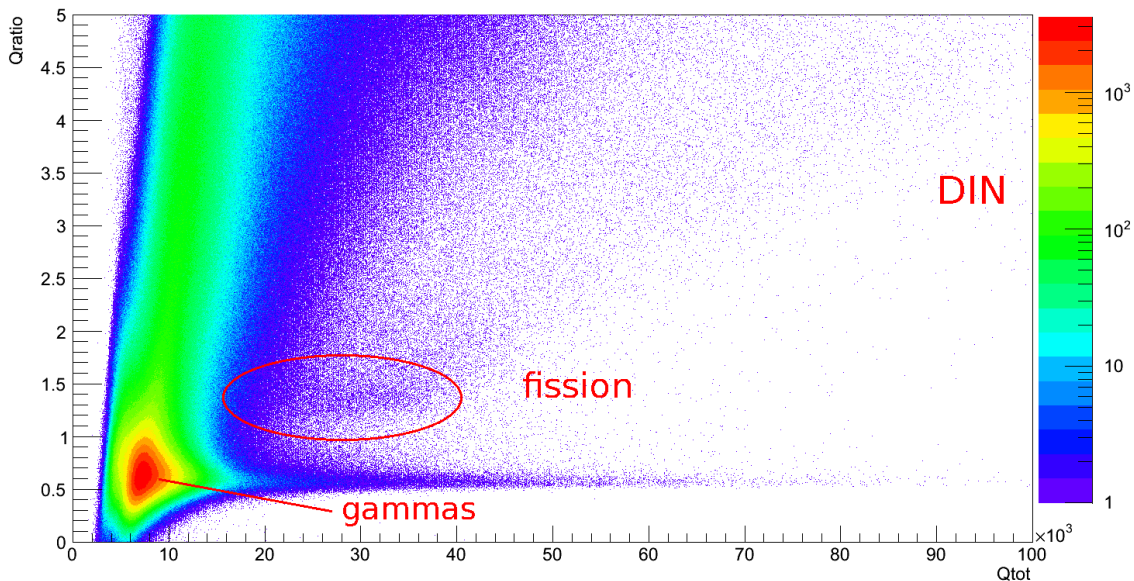


FIGURE 3.9 – Figure de discrimination des événements dans le DIN en mode LINAC.

On remarque tout d'abord la présence importante des gammas qui constituent la majorité des événements. Ces figures de discrimination sont également fortement polluées par des empilements de signaux dus aux gammas. Ces empilements donnent lieu à des valeurs en ratio ainsi qu'en charge totale plus importantes que celles des gammas et perturbent l'identification des événements de fission. La méthode de réjection des empilements que nous avons développée fonctionnerait bien dans ce cas-là, mais elle nécessite la sauvegarde des signaux échantillonnés qui, limitée à 1 kHz par l'acquisition FASTER, ne permettait pas d'avoir une statistique suffisante sur la fission compte tenu du faible temps de faisceau disponible.

Par ailleurs, la quantité d' $^{235}\text{U}$  dans le DIN étant plus importante que dans l'EJ-309 et suite aux problèmes d'évaporation subis par les deux cellules, la dégradation de l'EJ-309 est trop importante pour en extraire des résultats satisfaisants, nous ne montrerons dans la suite que les résultats associés au DIN.

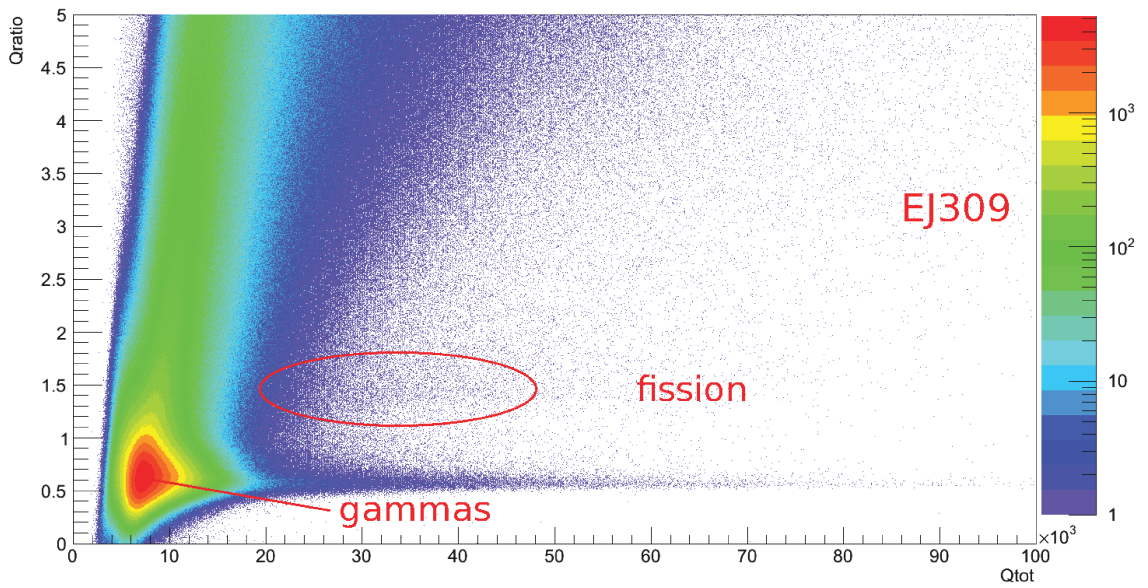


FIGURE 3.10 – Figure de discrimination des événements dans l'EJ-309 en mode LINAC.

### 3.3.1.1 Spectre en temps de diffusion des neutrons

Le spectre du temps de diffusion des neutrons associés à des événements dans la cellule DIN est représenté sur la figure 3.11. Il y a un manque évident de données en dessous de 2  $\mu\text{s}$  causé par l'important flash gamma provenant de la réaction de spallation. Le tube photomultiplicateur est complètement saturé et ne délivre aucun signal. Entre 2  $\mu\text{s}$  et 16  $\mu\text{s}$ , nous observons une récupération progressive du photomultiplicateur. Pendant cette récupération, les signaux délivrés par le photomultiplicateur possèdent une ligne de base ayant un offset jusqu'à 7 V, sortant de la gamme en tension acceptée en entrée de notre acquisition qui est de 2 V. Les signaux échantillonnés ne sont pas exploitables pendant cette récupération. Enfin, un pic à forte statistique est également présent à 216  $\mu\text{s}$  suivi d'une baisse de la statistique provenant de mauvais déclenchements sur la référence en temps du faisceau. Une fois les fissions sélectionnées grâce à l'histogramme de discrimination, nous obtenons le spectre en temps de diffusion des neutrons ayant induit une fission,



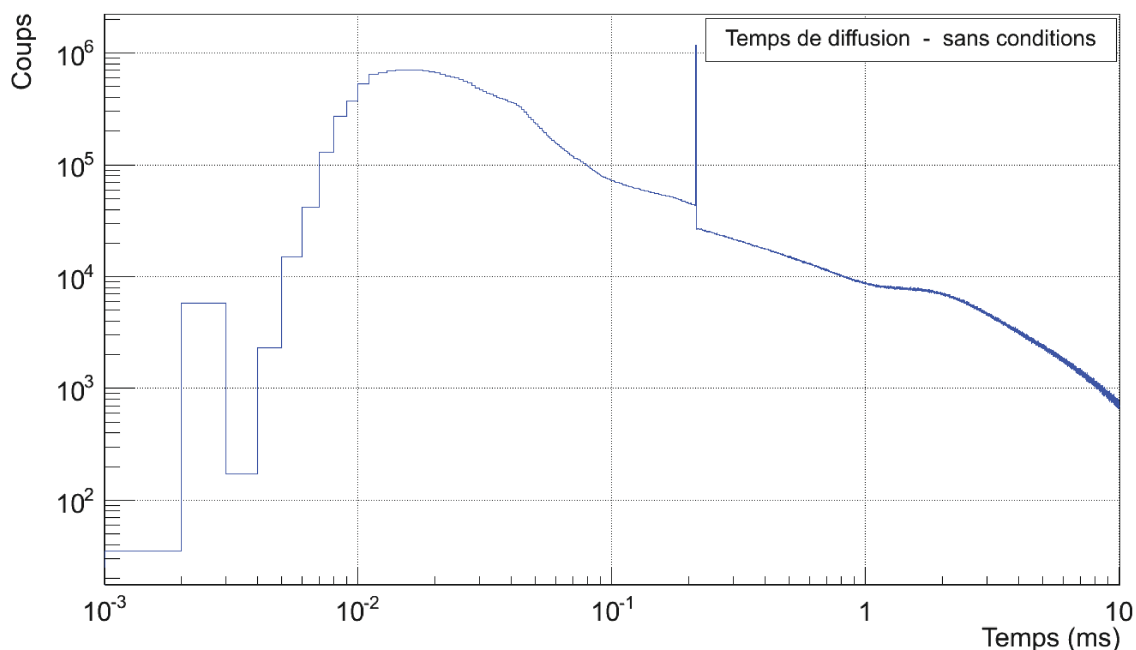


FIGURE 3.11 – Temps de diffusion dans le massif de plomb des neutrons associés à un évènement dans la cellule DIN en mode LINAC.

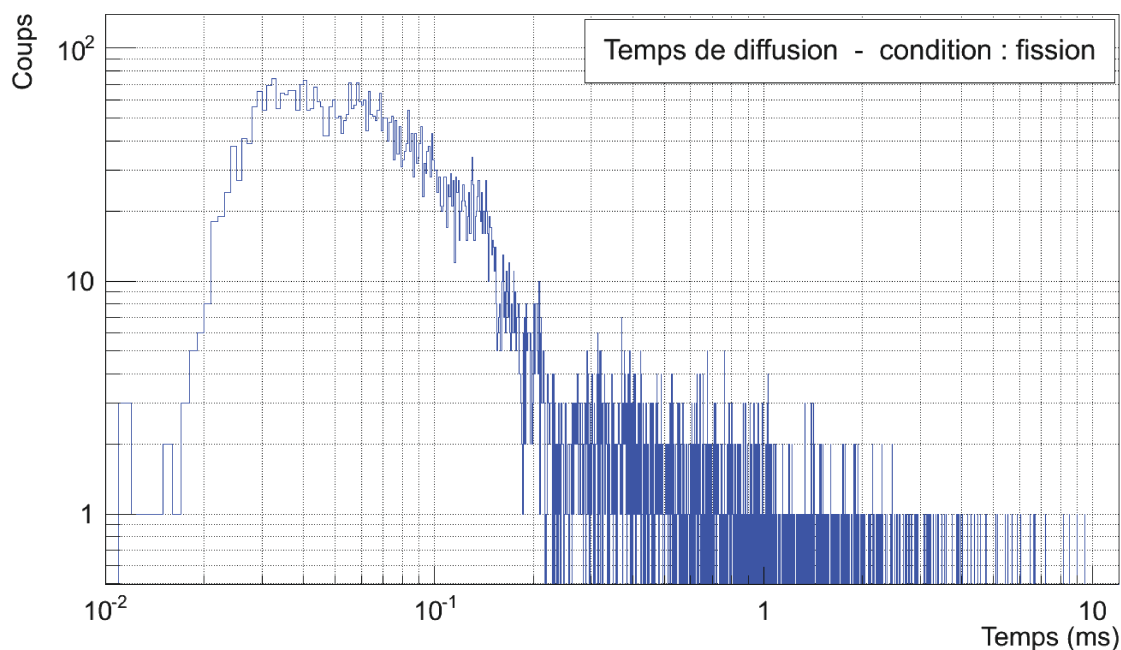


FIGURE 3.12 – Temps de diffusion dans le massif de plomb des neutrons associés à une fission dans la cellule DIN en mode LINAC.

représenté sur la figure 3.12. Les mêmes défauts sont visibles pour les temps de diffusions courts : nous ne pouvons compter que les fissions se produisant à des temps supérieurs à  $\sim 20 \mu\text{s}$ , soit des fissions induites par des neutrons d'énergie inférieure à  $\sim 400 \text{ eV}$ . Par ailleurs, comme nous l'avons vu sur les figures de discrimination, la forte ambiance gamma nécessite une sélection restrictive des évènements de fission. Cela implique un manque de statistique au-delà de  $\sim 1 \text{ ms}$ , soit pour des neutrons d'énergie inférieure à  $\sim 100 \text{ meV}$ .

### 3.3.1.2 Section efficace de fission non normalisée

Le spectre en temps présenté au paragraphe précédent nous donne un nombre de fissions en fonction du temps de diffusion du neutron. Nous pouvons alors en déduire un nombre de fissions en fonction de l'énergie du neutron grâce à l'équation 3.2. Enfin, une normalisation par rapport au flux de neutrons en fonction de l'énergie, s'écrivant sous la forme 3.3 [84], nous permet d'accéder à la section efficace de fission. Elle est présentée sur la figure 3.13. Notre mesure (points noirs) est comparée à la section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  provenant de la base de données ENDF/B-VII.1 convoluée à la résolution en énergie du LSDS (courbe verte).

$$\phi(E) = E^{-0,506} \exp\left(-\sqrt{\frac{0,22}{E}}\right) \quad (3.3)$$

On remarque un accord satisfaisant entre la mesure et les données existantes sur la forme de la section efficace dans une gamme restreinte en énergie : entre  $7.10^{-3}$  keV et  $3.10^{-2}$  keV. Le désaccord au-delà de  $4.10^{-2}$  keV est lié à la forte variation de la ligne de base des signaux délivrés par le tube photomultiplicateur suite au flash gamma. Aux alentours de  $3.10^{-3}$  keV, nous observons un creux qui n'est pas en accord avec les données évaluées. Ce désaccord est causé par deux phénomènes distincts. Le premier est le retour de neutrons ayant diffusé dans la salle de mesure, dégradant ainsi la résolution en énergie. Cet effet peut être réduit grâce à un blindage en carbure de bore.

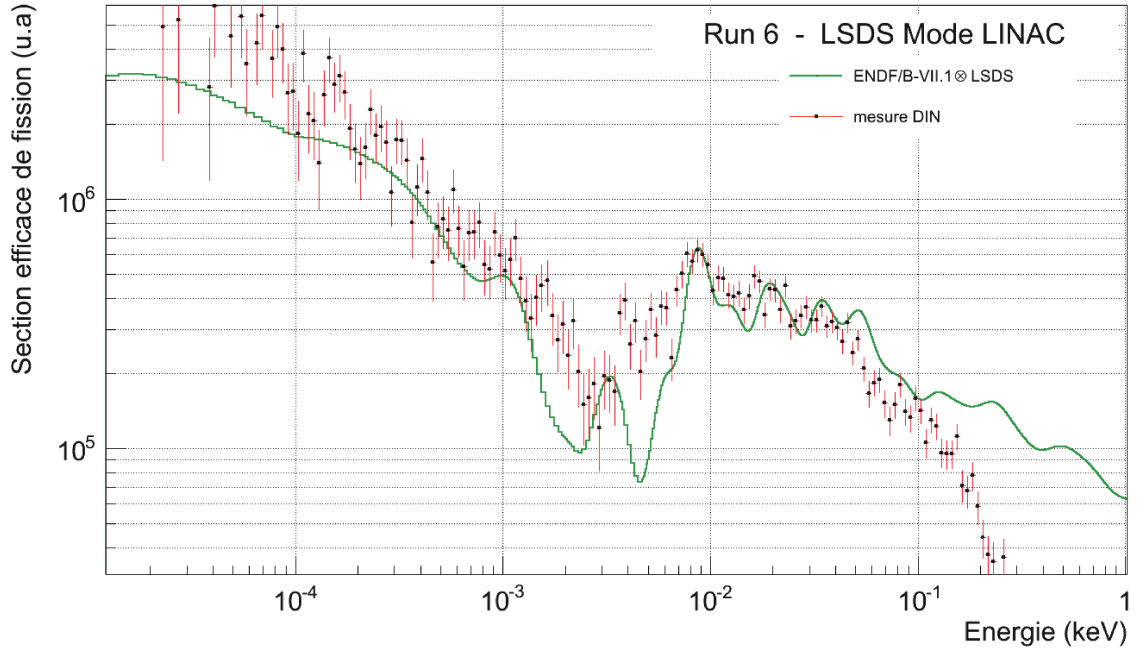


FIGURE 3.13 – Section efficace de fission non normalisée de l' $^{235}\text{U}$ , mesurée avec une cellule DIN en mode LINAC. Les points noirs correspondent à la mesure. La courbe verte correspond à des données de la base ENDF/B-VII.1 convoluées par la résolution en énergie du LSDS.

Le second phénomène est l'erreur d'assignation d'une fission dans la cible active à la référence en temps du faisceau. Comme représenté sur le chronogramme de la figure 3.14, chaque macro-impulsion contient deux micro-impulsions espacées de

216  $\mu\text{s}$ . Dès la première micro-impulsion, des fissions peuvent avoir lieu dans la cible active, et ce jusqu'à la prochaine macro-impulsion. Il y a donc une région pour laquelle l'erreur relative sur le calcul de l'énergie du neutron selon l'assignation de l'évènement à l'une des deux micro-impulsions est importante.

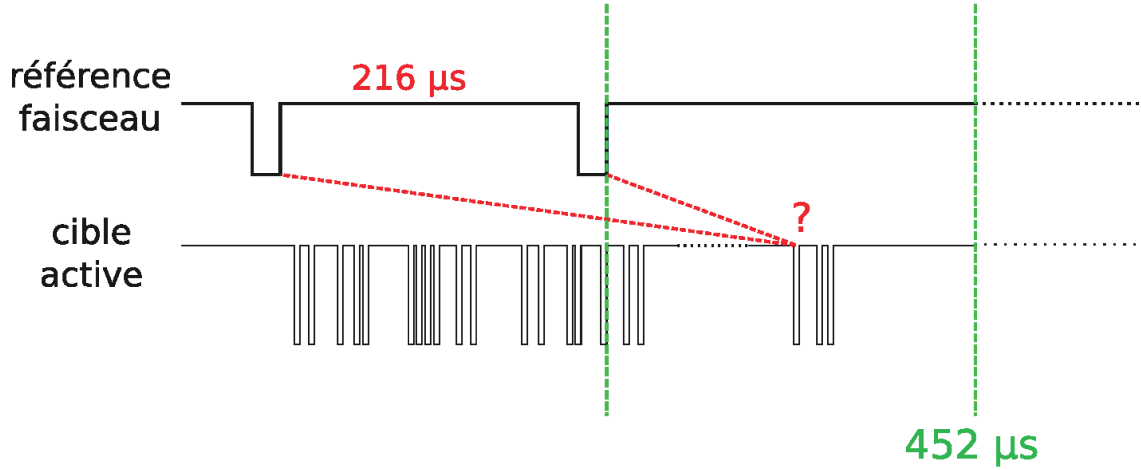


FIGURE 3.14 – Représentation schématique du chronogramme des événements dans la cible active.

En prenant comme référence en temps la première micro-impulsion, l'erreur relative commise en fonction du temps de diffusion  $t_d$  si la bonne référence est la deuxième impulsion s'écrit :

$$Err(t_d) = 1 - \left( \frac{t_d + 0,37}{t_d + 216,37} \right)^2 \quad (3.4)$$

Par ailleurs, la résolution en énergie du LSDS en fonction de l'énergie moyenne du neutron  $\bar{E}$  peut s'écrire sous forme suivante [83] :

$$R(\bar{E}) = 0,29 \cdot \sqrt{1 + \frac{1,96}{\bar{E}}} \quad (3.5)$$

Ainsi, grâce à la relation (3.2), on peut en déduire la résolution en fonction du temps de diffusion. Sur la figure 3.15, nous comparons la résolution en énergie du LSDS, en rouge, à l'erreur relative associée à l'indétermination de l'impulsion à l'origine de l'évènement, en bleu, en fonction du temps de diffusion des neutrons. Nous observons ainsi que l'erreur relative est bien supérieure à la résolution en énergie pour des événements se produisant entre la deuxième micro-impulsion et environ 452  $\mu\text{s}$ , soit pour des fissions induites par des neutrons d'énergie comprise entre 0,8 eV et 3,4 eV.

### 3.3.2 Pour le mode PSR

Le mode PSR fournissant un faisceau beaucoup plus intense qu'en mode LINAC, le flash gamma est plus important et la saturation de notre tube photomultiplicateur s'étend jusqu'à 40  $\mu\text{s}$ . L'ambiance gamma est également plus importante, et comme le montre la figure 3.16 de discrimination des événements dans le DIN en mode PSR, on ne distingue plus les fissions des événements gammas ni des empilements. En appliquant la même sélection dans l'histogramme bidimensionnel que

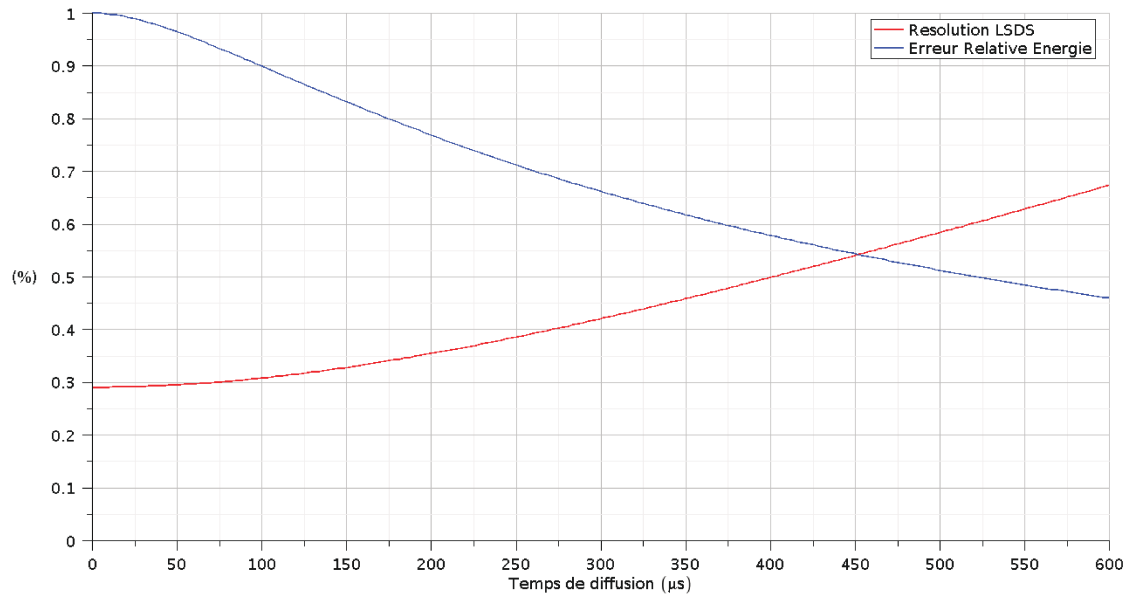


FIGURE 3.15 – Comparaison de la résolution en énergie du LSDS et de l’erreur relative sur le calcul de l’énergie du neutron selon la référence en temps choisie, en fonction du temps de diffusion des neutrons.

lors de l’analyse précédente, la section efficace de fission que nous obtenons n’est pas satisfaisante. Couplé à l’évaporation du scintillateur déjà évoquée, il nous est impossible de conclure sur les possibilités de mesure de la section efficace de fission en mode PSR.

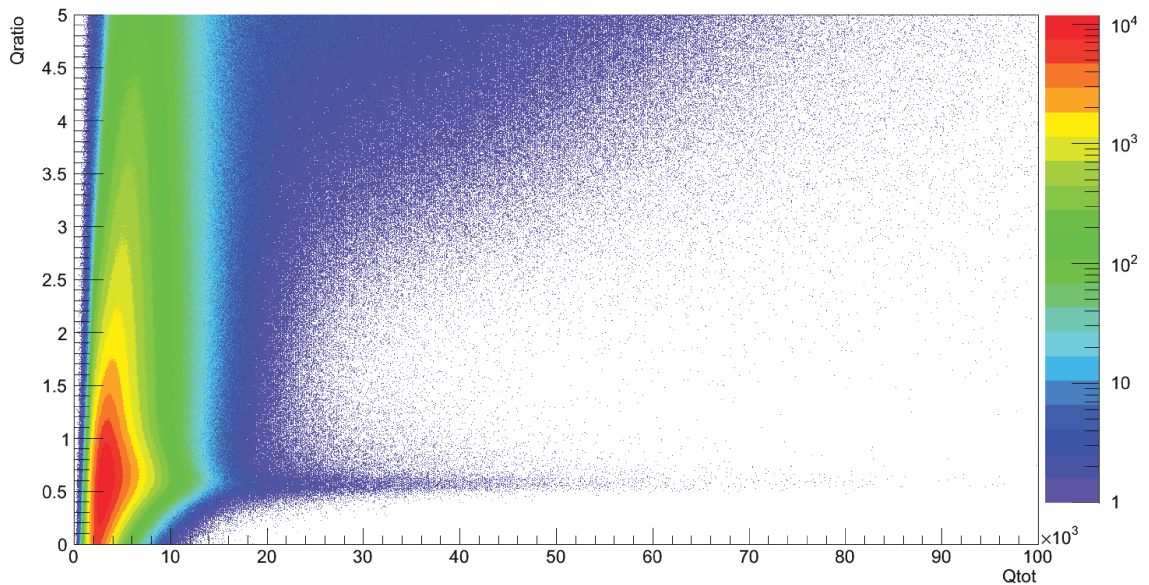


FIGURE 3.16 – Figures de discrimination des évènements dans le DIN en mode PSR.

### 3.4 Conclusions

La comparaison entre les données ENDF/B-VII.1 et nos mesures en mode LINAC montre un accord encourageant sur la forme des sections efficaces. Malgré le déport



des tubes photomultiplicateurs de l'axe du canal d'irradiation des cibles actives grâce à des guides optiques, les tubes photomultiplicateurs subissent toujours l'impact du flash gamma avec une saturation puis une fluctuation importante de la ligne de base des signaux jusqu'à  $\sim 16 \mu\text{s}$  après la réaction de spallation des protons sur la cible de tungstène. Ces effets sont encore plus importants lorsque nous utilisons le mode PSR.

Des améliorations doivent être envisagées afin de pouvoir utiliser la cible active en mode PSR, mode nécessaire pour réaliser des mesures avec seulement quelques nanogrammes d'actinide. Une meilleure encapsulation ainsi qu'un volume de liquide scintillant plus important doivent être envisagés. Ensuite, les effets du flash gamma pourraient être réduits grâce à l'utilisation d'un tube photomultiplicateur doté d'un système de coupure de haute tension. Ce système a par ailleurs été testé sur un accélérateur d'électrons produisant des gammas par rayonnement de freinage à Bruyères-le-Châtel et permettant de simuler un flash gamma. Le principe est que lorsque le photomultiplicateur reçoit un signal dans une entrée dédiée, la haute tension n'est pas appliquée entre la photocathode et la première dynode. La saturation due au flash gamma ne serait alors plus observée.



## Deuxième partie

### Les possibilités d'étude énergétique de la fission avec le détecteur CARMEN



La deuxième partie de ce travail de thèse porte sur l'étude énergétique de la fission avec la boule à neutrons CARMEN, et notamment l'étude de ses possibilités de mesures calorimétriques qui n'ont encore jamais été réalisées avec ce détecteur.

Ce type de détecteurs à gros volumes de liquide scintillant trouvent leur origine dans les années 1950. F. Reines et C.L. Cowan proposent l'utilisation d'un détecteur à grand volume de liquide scintillant dopé au cadmium afin de détecter les antineutrinos électroniques, émis lors des réactions de fission, par détection des neutrons produits lors d'une réaction entre un antineutrino et un proton du scintillateur [81, 82]. A la même époque, B.C. Diven et al. [29] et D.A. Hicks et al. [44] développent des détecteurs similaires, eux aussi dopés au cadmium, pour étudier l'émission de neutrons prompts dans la fission et mesurer des distributions de multiplicités neutroniques. Depuis lors, ils ont été principalement utilisés pour compter les neutrons émis lors des réactions de fission[36] ou des réactions  $(n, xn)$  [34, 54] par exemple.

Dans les années 1970, certaines expériences ont tout de même tiré parti des efficacités de détection des neutrons et des rayonnements gamma élevées de ce type de détecteur pour effectuer des mesures sur la fission et notamment étudier les corrélations entre l'émission de neutrons et de rayonnements gamma lors de la désexcitation des fragments. Seulement deux mesures existent parmi lesquelles on peut citer les mesures de J. Fréhaut qui a utilisé une boule à neutrons à Bruyères-le-Châtel afin d'établir une corrélation entre la multiplicité neutronique et l'énergie totale gamma rayonnée dans la fission induite par neutrons [35]. Enfin, les mesures de H. Nifenecker et al. [71] à la même époque ont permis la mesure corrélée de la multiplicité neutronique, de l'énergie totale gamma rayonnée et de l'énergie cinétique totale des fragments de fission. Ils ont pu déterminer une relation entre l'énergie totale gamma rayonnée et l'énergie cinétique des fragments de fission, ainsi qu'entre l'énergie totale gamma et le nombre de neutrons émis dans la fission du  $^{252}\text{Cf}$ .

Il y a très peu de données expérimentales corrélées sur l'émission de neutrons et de rayonnements gamma et sur l'énergie cinétique des fragments de fission. Il y a néanmoins besoin de ce type de mesures afin de mieux comprendre la désexcitation des fragments de fission et le partage de l'énergie lors du processus de fission et le détecteur CARMEN pourrait y contribuer. En plus de la multiplicité neutronique, l'utilisation de CARMEN en coïncidence avec un détecteur de fragments de fission pourrait nous permettre de réaliser des mesures calorimétriques de la fission en accédant à l'énergie cinétique totale des fragments, l'énergie totale gamma et l'énergie totale neutron, cette dernière n'ayant jamais été mesurée avec ce type de détecteur. Pour y parvenir, la réponse de CARMEN aux rayonnements gamma et aux neutrons doit être étudiée, et ses capacités de mesure de l'énergie totale gamma rayonnée et de l'énergie totale neutron doivent être déterminées.

Le premier chapitre sera consacré à la présentation de CARMEN, de son fonctionnement pour la détection des rayonnements gamma et le comptage de neutrons ainsi que de son système d'acquisition de données. Le second chapitre détaillera la calibration en énergie de CARMEN pour la mesure des énergies totales gamma et neutrons ainsi que les performances du liquide scintillant de CARMEN. Le dernier

chapitre sera consacré à l'étude par simulation des possibilités de mesure des énergies totales gamma et neutrons avec CARMEN dans sa configuration actuelle et de ses améliorations possibles.

# Chapitre 4

## Le détecteur CARMEN

Le détecteur CARMEN, acronyme pour COMPTEURS ASSOCIÉS RELATIFS À LA MESURE DES NEUTRONS, est un détecteur de type “boule à neutrons” qui a été conçu et développé au début des années 2000. Ce détecteur, dont l’angle solide est très proche de  $4\pi$  sr, présente une grande efficacité de détection des neutrons et a déjà été utilisé dans le cadre de la thèse de I. Lantuéjoul pour la mesure de multiplicités neutroniques dans les réactions  $(n, xn)$  [54].

### 4.1 Description du détecteur

Présenté sur la figure 4.1, il s’agit d’une sphère de 60 cm de rayon segmentée en deux hémisphères dont l’enveloppe est constituée de fer d’épaisseur 5 mm. Chaque hémisphère est fixé à un bâti en acier reposant sur des rails permettant de faire varier l’écartement entre les deux hémisphères de 0 (configuration fermée) à 2 m. Un logement sphérique de 15 cm de rayon est présent au centre de CARMEN. Il permet d’insérer une cible ou un détecteur actif selon les besoins de l’expérience. Un canal vertical cylindrique de rayon 5 cm est également présent au centre de CARMEN. Il permet de laisser passer le dispositif de maintien et d’alimentation de la cible ou du détecteur placé dans la chambre à réaction. Un canal cylindrique horizontal de rayon 5 cm, également au centre de CARMEN, donne un accès à la chambre à réaction dans le cas d’une utilisation sous faisceau collimaté.

Les deux hémisphères contiennent au total 950 L de scintillateur *Bicron BC521*. Il s’agit d’un scintillateur liquide organique à base de pseudocumène<sup>1</sup> dopé à 0,5% en masse avec du gadolinium ( $Z = 64$ ), dont la composition en fraction atomique est notée dans le tableau 4.1. Sur chaque hémisphère sont disposés 12 tubes photomultiplicateurs Photonis XP4512B en contact direct avec le liquide scintillant afin de collecter la lumière émise par le scintillateur. Par ailleurs, la paroi interne de chaque hémisphère de CARMEN est recouverte de peinture réfléchissante permettant d’augmenter la collecte de lumière des tubes photomultiplicateurs.

---

1. triméthyl-1,2,4-benzène

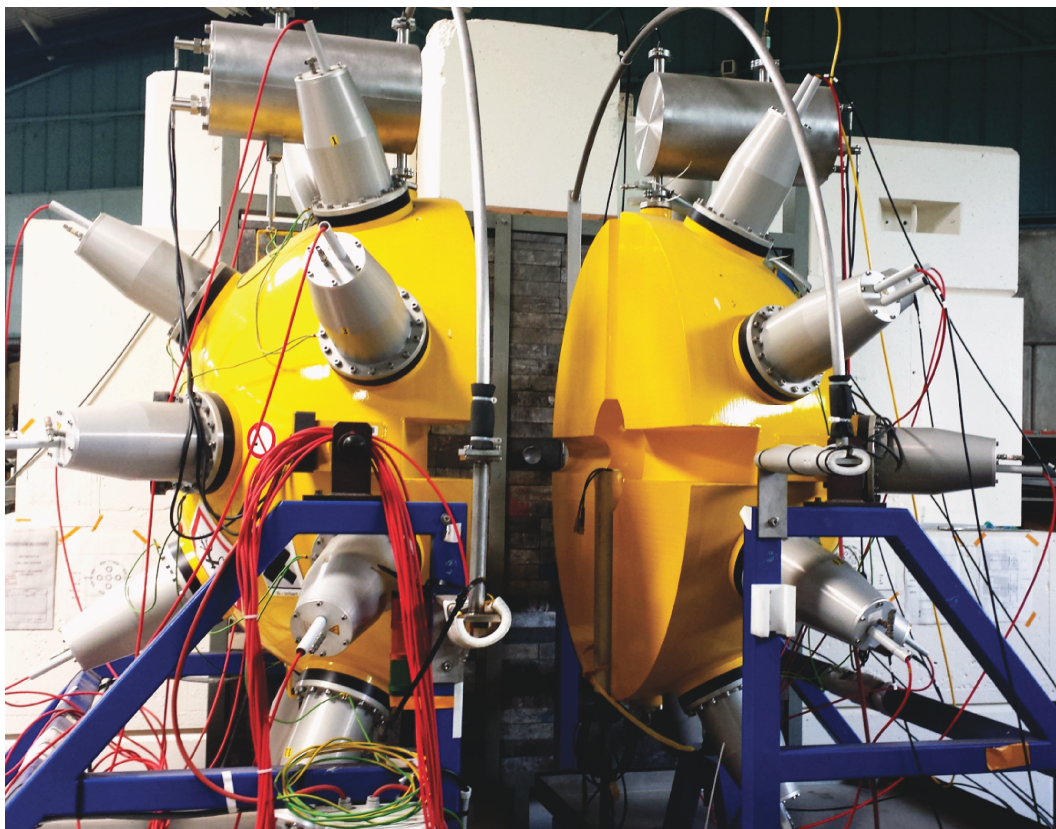


FIGURE 4.1 – Le détecteur CARMEN.

Element	Fraction atomique
C	$4,32 \cdot 10^{-1}$
H	$5,67 \cdot 10^{-1}$
$^{152}\text{Gd}$	$2,95 \cdot 10^{-7}$
$^{154}\text{Gd}$	$3,21 \cdot 10^{-6}$
$^{155}\text{Gd}$	$2,18 \cdot 10^{-5}$
$^{156}\text{Gd}$	$3,02 \cdot 10^{-5}$
$^{157}\text{Gd}$	$2,30 \cdot 10^{-5}$
$^{158}\text{Gd}$	$3,66 \cdot 10^{-5}$
$^{160}\text{Gd}$	$3,22 \cdot 10^{-5}$

TABLE 4.1 – Composition du scintillateur en fraction atomique.



### 4.1.1 Fonctionnement du détecteur

Le principe de fonctionnement de CARMEN est basé sur les différentes interactions des neutrons et des rayonnements gamma dans le liquide scintillant dopé au gadolinium. Il peut être décrit en deux étapes qui donnent lieu à deux types de signaux de fluorescence que l'on nomme **signal prompt** (ou **pic prompt**), et **signal retardé** tels que représentés schématiquement sur la figure 4.3.

Au cours de leur trajet dans CARMEN, les rayonnements gamma et les neutrons interagissent avec le scintillateur et y déposent leur énergie. Les gammas de fission, dont la gamme en énergie s'étend du kilo-électronvolt à la dizaine de méga-électronvolts, interagissent majoritairement par effet Compton, et plus minoritairement par effet photoélectrique et création de paire. Ils transfèrent ainsi leur énergie aux électrons du milieu. Les neutrons subissent principalement des diffusions sur les noyaux d'hydrogène du scintillateur. Pendant une centaine de nanosecondes, au cours d'une phase nommée ralentissement ou "thermalisation", les neutrons sont ralentis par diffusions successives et déposent leur énergie dans le scintillateur jusqu'à atteindre l'équilibre thermique où ils possèdent une énergie cinétique moyenne  $E_{th} = kT = 25,3 \text{ meV}$  (à  $20^\circ\text{C}$ ).

La lumière de fluorescence émise par le liquide scintillant suite à ces interactions avec les neutrons et les rayonnements gamma est ensuite collectée par des tubes photomultiplicateurs et constitue ainsi le **signal prompt** de CARMEN. Ce dernier contient toute l'information nécessaire sur l'énergie totale déposée par les neutrons et les rayonnements gamma que nous pouvons ensuite mesurer par calcul de son intégrale. L'extraction de l'énergie totale gamma et de l'énergie totale neutron contenues dans ce pic prompt fera l'objet d'une étude par simulation détaillée dans le chapitre 6.

La seconde étape est celle qui nous permet de compter les neutrons thermalisés grâce à leur capture dans le liquide scintillant. La section efficace de capture d'un neutron thermique par le gadolinium présent à 0,5% en masse dans le liquide scintillant est très élevée. Pour les isotopes  $^{157}\text{Gd}$  et  $^{155}\text{Gd}$ , elles valent respectivement  $2,54 \cdot 10^5$  barns et  $6,11 \cdot 10^4$  barns. Les neutrons thermalisés ont donc une probabilité élevée d'être capturés par les noyaux de gadolinium.

Suite à ces captures, des noyaux de  $^{158}\text{Gd}^*$  et  $^{156}\text{Gd}^*$  sont formés avec une énergie d'excitation respective de 8,46 MeV et 7,87 MeV qu'ils vont perdre par émission de rayonnements gamma[80] (cf. figure C.1 de l'annexe C). Ces rayonnements gamma sont alors détectés dans CARMEN et chaque capture de neutron est associée à un dépôt d'énergie caractéristique de l'ordre de 8 MeV. Il faut également noter que, dans une moindre mesure, les neutrons peuvent être capturés par les noyaux d'hydrogène qui présentent une section efficace de capture de neutrons thermiques de l'ordre de 330 mb et se dés excitent en émettant 2,22 MeV d'énergie sous forme de rayonnements gamma. Sa section efficace est bien plus faible que celle des noyaux de gadolinium mais elle est compensée par sa présence en grande quantité dans le liquide scintillant, capturant ainsi jusqu'à 10% des neutrons.

L'ensemble de ces signaux forme ce que l'on appelle les **signaux retardés**, ou **signaux de capture**, qui nous permettent de compter le nombre de neutrons détectés indépendamment des mesures calorimétriques. Cette étape dure plusieurs dizaines de microsecondes et elle est caractérisée par une distribution en temps de capture

des neutrons caractéristique. La figure 4.2 représente la distribution en temps des captures de neutrons dans l'hémisphère droit de CARMEN suite à des fissions spontanées du  $^{252}\text{Cf}$ . Cette distribution est piquée à  $\sim 6 \mu\text{s}$  et s'étend jusqu'à  $50 \mu\text{s}$ , au bout desquels on peut considérer que 99% des captures ont eu lieu [92].

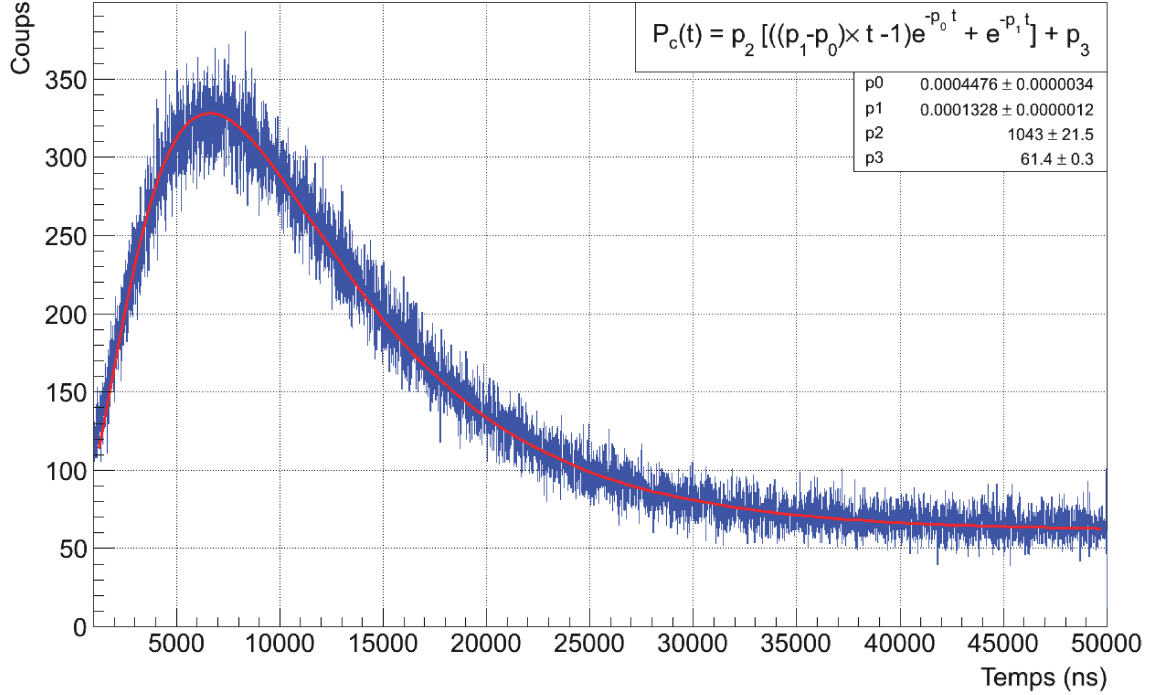


FIGURE 4.2 – Distribution en temps de capture d'un neutron dans l'hémisphère droit de CARMEN (en bleu) et son ajustement (en rouge).

Cette distribution est caractéristique des concentrations en gadolinium et hydrogène du liquide scintillant, et peut s'écrire sous la forme [54, 86, 46] :

$$P_c(t) \simeq \alpha \left[ (t \times (\beta - \lambda) - 1) e^{-\lambda t} + e^{-\beta t} \right] + C \quad (4.1)$$

où  $\beta = 1,328.10^{-4} \text{ ns}^{-1}$  et  $\lambda = 4,476.10^{-4} \text{ ns}^{-1}$ , respectivement proportionnels à la concentration en gadolinium et en hydrogène dans le liquide; et  $\alpha = 1043$  et  $\alpha = 61,4$  sont des constantes.

La valeur de  $\beta$  permet d'estimer le nombre de noyaux de gadolinium dans le liquide scintillant [6] :

$$\beta = N_{Gd} \sigma_c v \quad (4.2)$$

où  $N_{Gd}$  est le nombre de noyaux de gadolinium par unité de volume,  $\sigma_c$  la section efficace de capture du gadolinium et  $v$  la vitesse des neutrons. Pour l'hémisphère droit de CARMEN, les neutrons thermiques ayant une vitesse de  $v = 2200 \text{ m s}^{-1}$  et la section efficace de capture de neutrons thermiques par le gadolinium étant de  $\sigma_c = 4,88.10^4 \text{ b}$ , on obtient  $N_{Gd} = 1,24.10^{24} \text{ m}^{-3}$ , soit une fraction massique en gadolinium de 0,37%. Une mesure similaire avec l'hémisphère gauche de CARMEN montre qu'elle contient une fraction massique de 0,38% de gadolinium.

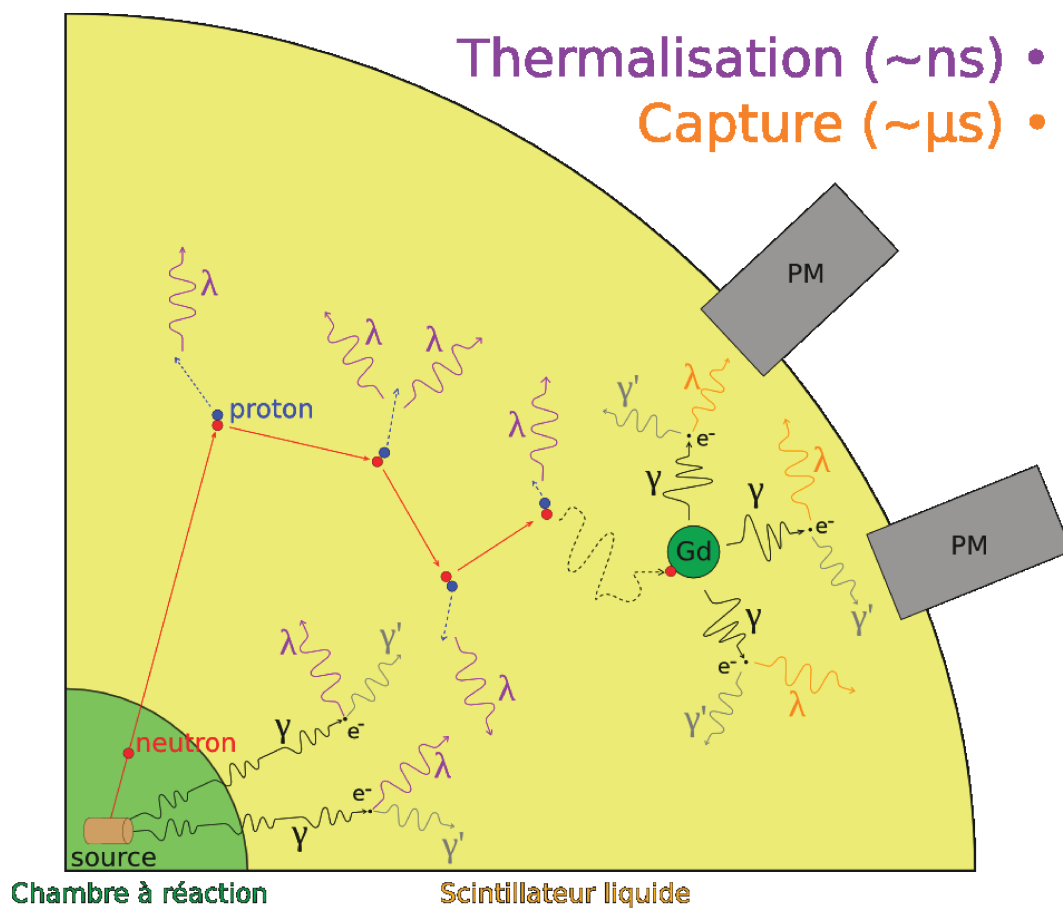


FIGURE 4.3 – Représentation schématique du fonctionnement de CARMEN.

### 4.1.2 Efficacités de détection des neutrons et des rayonnements gamma dans CARMEN

Pour ce qui est de l'efficacité de détection des neutrons, elle a déjà été caractérisée dans les travaux de thèse de *I. Lantuéjoul* [54], et nous l'avons redéterminée lors des simulations Monte Carlo décrites dans le chapitre 6.

Pour des neutrons d'énergie 2 MeV avec des hémisphères espacés de 2 cm, nous calculons une efficacité de capture par le gadolinium et l'hydrogène du liquide scintillant de 93,36%. Parmi les neutrons non capturés, 3,48% déposent de l'énergie dans le scintillateur et 3,17% s'échappent ou sont capturés dans l'enveloppe en fer de CARMEN sans déposer d'énergie dans le scintillateur.

Nous calculons également des efficacités de détection pour des rayonnements gamma d'énergie 1 MeV. On observe une efficacité d'absorption totale de 36,81%, et une efficacité totale de détection de 86,66%. Le rapport pic sur total (P/T) vaut 42,48% à 1 MeV. On remarque par ailleurs que l'efficacité totale de détection diminue fortement pour les rayonnements gamma d'énergie inférieure à 300 keV. Cela provient de l'augmentation de l'absorption des rayonnements gamma dans le fer constituant l'enveloppe de CARMEN.

Les figures 4.4 et 4.5 représentent l'évolution des efficacités de détection des rayonnements gamma et neutrons en fonction de leur énergie.

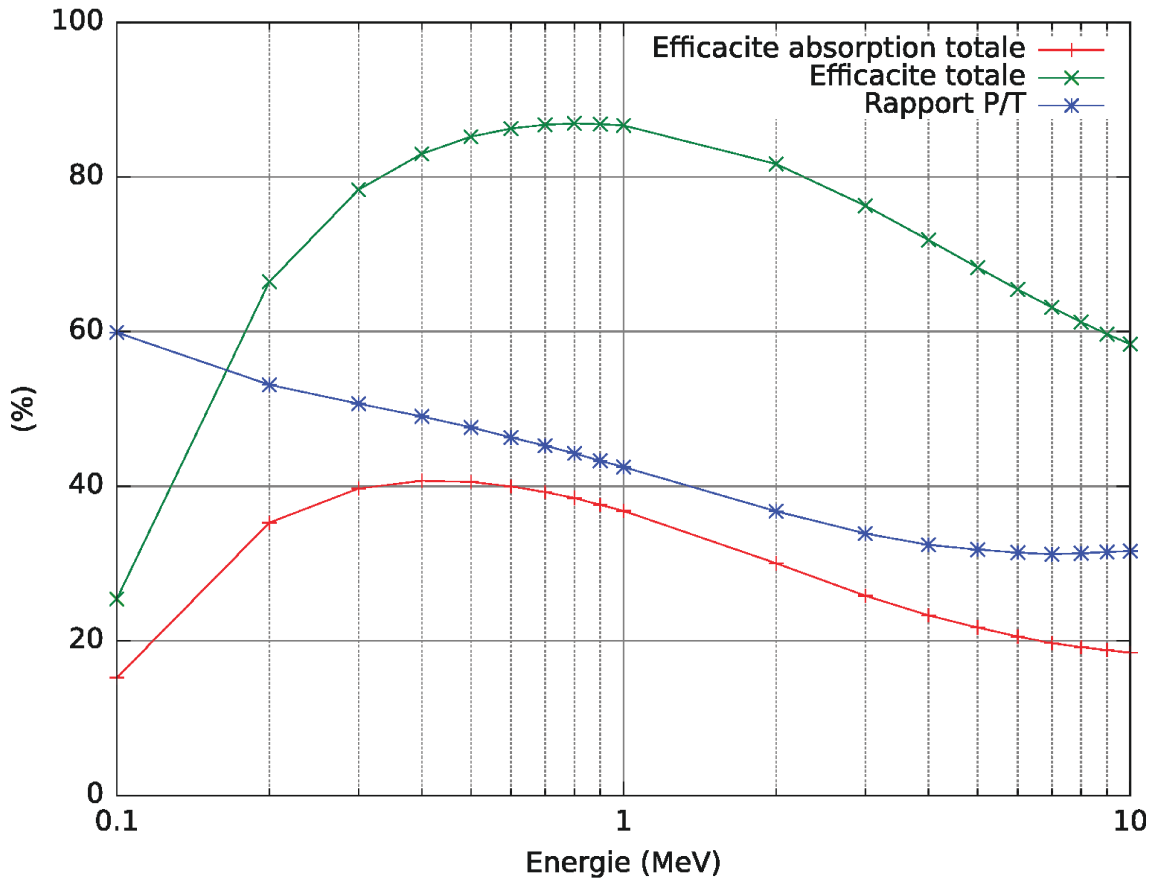


FIGURE 4.4 – Evolution de l'efficacité de détection des rayonnements gamma en fonction de leur énergie. L'efficacité d'absorption totale est en rouge, l'efficacité totale est en vert et le rapport pic sur total est en bleu.

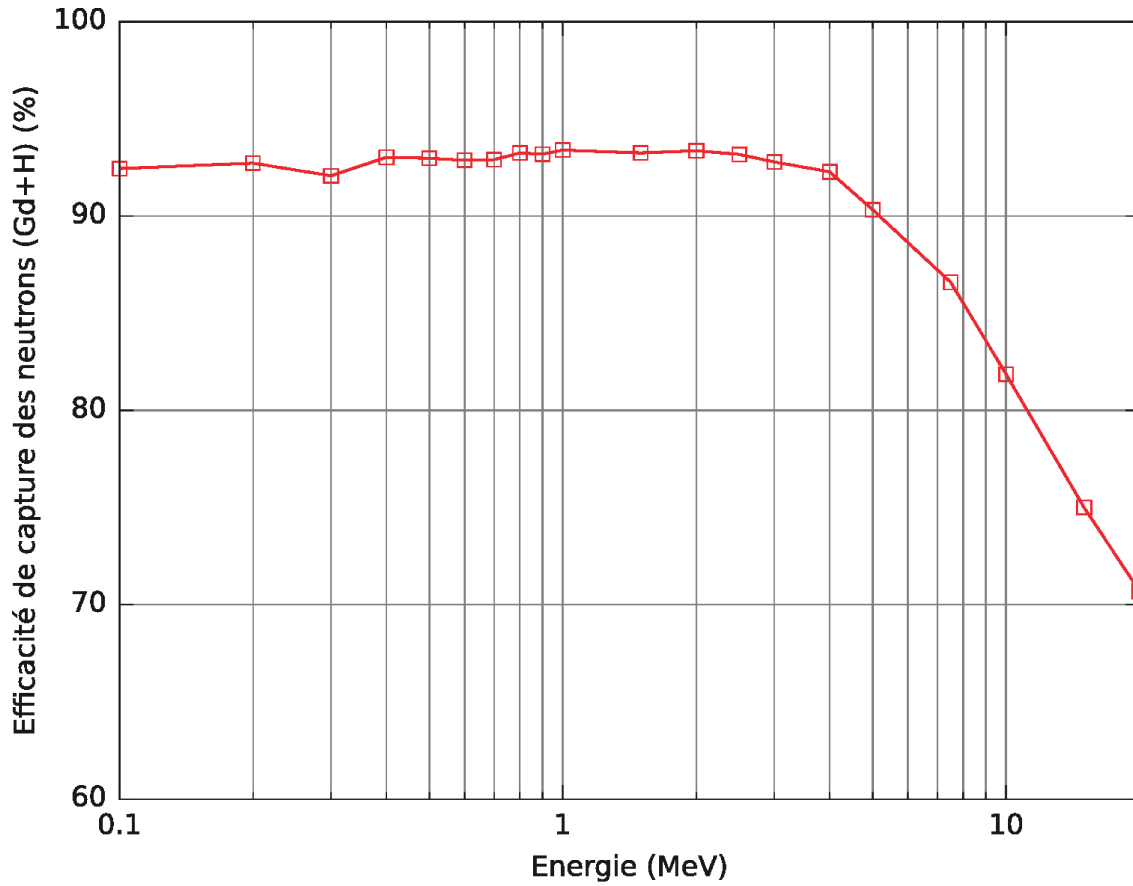


FIGURE 4.5 – Evolution de l’efficacité de détection des neutrons en fonction de leur énergie.

On constate que l’efficacité de détection des neutrons varie très peu jusqu’à environ 4 MeV et diminue progressivement jusqu’à 70% à 20 MeV. Pour ce qui est des rayonnements gamma, elle est maximale aux alentours de 1 MeV et chute à basse et haute énergies. En outre leur dépôt d’énergie n’est pas total.

## 4.2 Les tubes photomultiplicateurs

La collection de la lumière de la scintillation dans chaque hémisphère de CAR-MEN est assurée par douze photomultiplicateurs Photonis XP4512B. Ils convertissent les photons de fluorescence émis par le liquide scintillant en signaux électriques.

La figure 4.6 représente schématiquement un tube photomultiplicateur. Il est composé d’une photocathode recevant les photons de fluorescence directement émis par le liquide scintillant ou suite à des réflexions sur les parois internes de CAR-MEN. Ces photons sont absorbés par la photocathode et transfèrent leur énergie aux électrons du milieu qui diffusent ensuite dans la photocathode. Les électrons atteignant la surface avec une énergie minimum de l’ordre de l’électronvolt peuvent alors s’en échapper. Pour un nombre de photons  $N_{h\nu}$  absorbés par la photocathode, on observe  $N_{phe}$  électrons s’échappant de la photocathode appelés photoélectrons. Selon la longueur d’onde des photons incidents, l’épaisseur de la photocathode, ou encore sa composition, le ratio entre le nombre de photoélectrons émis et le nombre

de photons absorbés, nommé efficacité quantique, varie. Pour la photocathode bi-alkali des XP4512B, l'efficacité quantique vaut 25% entre 350 nm et 450 nm.

Les photoélectrons sont ensuite accélérés et focalisés par une électrode de focalisation, puis multipliés sur chaque dynode de l'étage multiplicateur par émission d'électrons secondaires. La quantité d'électrons secondaires émis varie en fonction de la composition des dynodes et de la tension d'accélération des électrons primaires. Le nombre final d'électrons collectés par l'anode est proportionnel à l'énergie déposée dans le scintillateur, caractérisée par le nombre  $N_{h\nu}$  de photons de scintillation émis, et dépendant de la tension appliquée au tube photomultiplicateur :

$$N_e \propto \alpha V^{k \cdot N} QE N_{h\nu}$$

où  $\alpha$  est l'efficacité de collection de photoélectrons de la première dynode,  $V$  la tension appliquée au tube photomultiplicateur,  $N$  le nombre de dynodes de l'étage multiplicateur,  $k$  une constante inférieure à 1 et  $QE$  l'efficacité quantique de la photocathode.

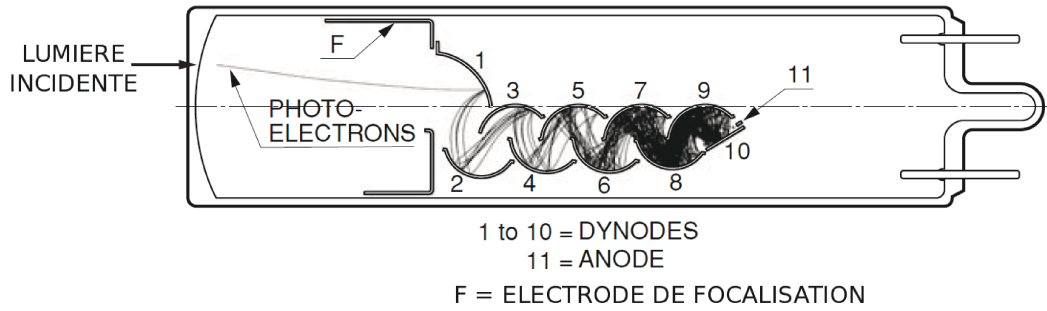


FIGURE 4.6 – Représentation schématique d'un tube photomultiplicateur (issu de la référence [1]).

### 4.3 Le système d'acquisition

Afin d'acquérir les données provenant de CARMEN, nous utilisons le système d'acquisition numérique FASTER<sup>1</sup>, développé par le Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen [32] tel que représenté sur la figure 4.7. Les sorties anodes des tubes photomultiplicateurs sont directement connectées aux modules de notre système d'acquisition de données.

La figure 4.8 représente schématiquement un module FASTER. Ces modules sont insérés dans un châssis microTCA permettant l'utilisation synchronisée d'un grand nombre de voies (jusqu'à la centaine de voies selon la taille du châssis). Chaque module comporte quatre voies réparties sur deux cartes filles nommées CARAS, elles-mêmes connectées à une carte mère nommée SYROCO. Ce système est entièrement numérique. Il est basé sur des convertisseurs analogiques flash, ou flash ADC, qui permettent d'échantillonner les signaux entrant sur 12 bits à une fréquence de 500 MHz. Ces signaux échantillonnés sont ensuite traités par des FPGA<sup>2</sup>. La bande

1. Fast Acquisition System for nuclEar Research

2. Field-Programmable Gate Array





FIGURE 4.7 – Photo du panier microTCA contenant les cartes FASTER sur lesquelles sont connectés chacun des tubes photomultiplicateurs de CARMEN.

passante est limitée à 100 MHz par un filtre passe-bas avant l'échantillonnage des signaux. Les cartes CARAS disposent d'une dynamique d'entrée de  $\pm 1,15$  V et d'un niveau de bruit de l'ordre de  $600 \mu V_{rms}$ . Un offset de  $\pm 1,1$  V ainsi que la polarité du signal d'entrée sont réglables afin d'exploiter pleinement la plage dynamique de FASTER. Différents algorithmes ou modules, tels que des ADC<sup>1</sup> ou des QDC-TDC<sup>2</sup>, peuvent être facilement implémentés à distance et à volonté sur les FPGA des cartes mères. Dans le cas de CARMEN, nous utilisons les modules QDC-TDC. Les données sont traitées sous forme d'arbre. Chaque nœud (nodes sur la figure) de l'arbre effectue le tri en temps et l'agrégation des données provenant de nœuds inférieurs, ainsi que les décisions spécifiées dans le module de décision présenté au paragraphe 4.3.2.

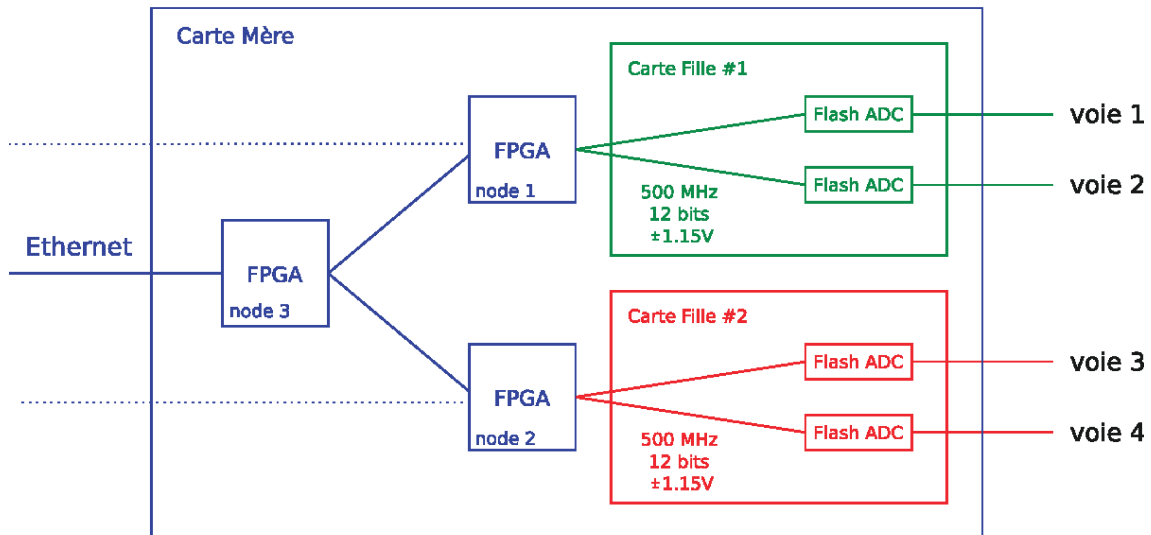


FIGURE 4.8 – Représentation schématique d'une carte FASTER.

1. Analog-to-Digital Converter

2. Charge-to-Digital Converter, Time-to-Digital Converter

### 4.3.1 Le module QDC-TDC

Le module QDC-TDC permet de calculer la charge d'un signal (jusqu'à quatre charges peuvent être calculées) et son temps de déclenchement avec une grande précision. Il dispose également d'une fonction de suivi de la ligne de base du signal échantillonné grâce à un filtre passe-bas, nommée BLR<sup>3</sup>. Dès la détection d'un signal physique, le suivi est désactivé pendant la durée de ce signal et la ligne de base calculée juste avant sa détection lui est soustraite.

La détection des signaux peut être effectuée selon 3 types de triggers : à seuil, externe ou bien CFD<sup>4</sup>. Nous utilisons principalement le trigger CFD. Son principe est simple : le signal est divisé en deux parties dont l'une est atténuée d'une fraction de l'amplitude initiale du signal et l'autre est retardée puis inversée. La somme de ces deux signaux forme un signal bipolaire permettant, sous couvert d'un choix de fraction et de retard adaptés, de détecter un événement par le franchissement d'un seuil. La référence en temps du déclenchement est fournie par le passage par zéro de ce signal bipolaire. L'avantage d'un CFD est que le temps de déclenchement est indépendant de l'amplitude du signal initial, éliminant l'effet de *walk* présent avec un simple trigger à seuil par exemple. Le CFD fournit ainsi une référence en temps du déclenchement avec une très bonne résolution en temps, typiquement de l'ordre de la dizaine de picosecondes pour des signaux d'amplitude supérieure à 1 V.

### 4.3.2 Le module de décision

Concernant le tri des données, FASTER dispose d'un module de décision nommé *trigger* contenant deux types de décisions associées à un module de regroupement nommé *merger*. Un trigger de type booléen doté des opérateurs ET, OU et SAUF permet des coïncidences entre les différentes voies sur une fenêtre en temps choisie. Un trigger de type multiplicité est également disponible. Une coïncidence est alors détectée lorsque, au choix, « au moins » ; « exactement » ou « moins de »  $m$  voies sont détectées dans la fenêtre en temps choisie.

Le module de regroupement (*merger*) permet quant à lui de créer un groupe de coïncidences dès lors que les conditions du trigger sont remplies. Il est possible de déclarer des voies en tant que “suiveuses” qui seront ajoutées au groupe de coïncidence contenant déjà les voies du trigger si elles sont détectées dans une fenêtre de regroupement choisie.

Enfin, pour les besoins de l'expérience avec CARMEN, il est également possible d'utiliser deux triggers (de type multiplicité ou booléen) en parallèle afin de différencier chaque hémisphère.

### 4.3.3 La carte Time Lock

Un système de décision dédié à CARMEN est en cours de développement afin de mieux filtrer les données. Il est représenté par un chronogramme simplifié sur la figure 4.9. La décision est effectuée en deux étapes ; elle est régulée par un premier niveau de décision. Un premier trigger booléen nommé VERROU permet de filtrer les données signant une fission dans la cible active. Ce premier trigger verrouille également les décisions au niveau de CARMEN tant qu'aucune fission n'a été détectée.

---

3. BaseLine Restorer

4. Constant Fraction Discriminator



Dès lors qu'une fission est détectée, les voies de CARMEN sont déverrouillées pendant 50  $\mu$ s (valeur ajustable), et deux triggers de multiplicité (un par hémisphère) sont chaînés pendant une durée de 50  $\mu$ s et permettent de détecter les événements du pic prompt et de capture dans chaque hémisphère indépendamment.

Le verrouillage des voies de CARMEN permet ainsi de ne pas saturer le système avec des événements non physiques tout en utilisant des seuils de détection très bas sur chaque tube photomultiplicateur. Une fois les voies déverrouillées, les triggers multiplicité sur chaque hémisphère permettent d'éliminer les événements autres que les captures conduisant à un grand nombre de tubes photomultiplicateurs touchés.

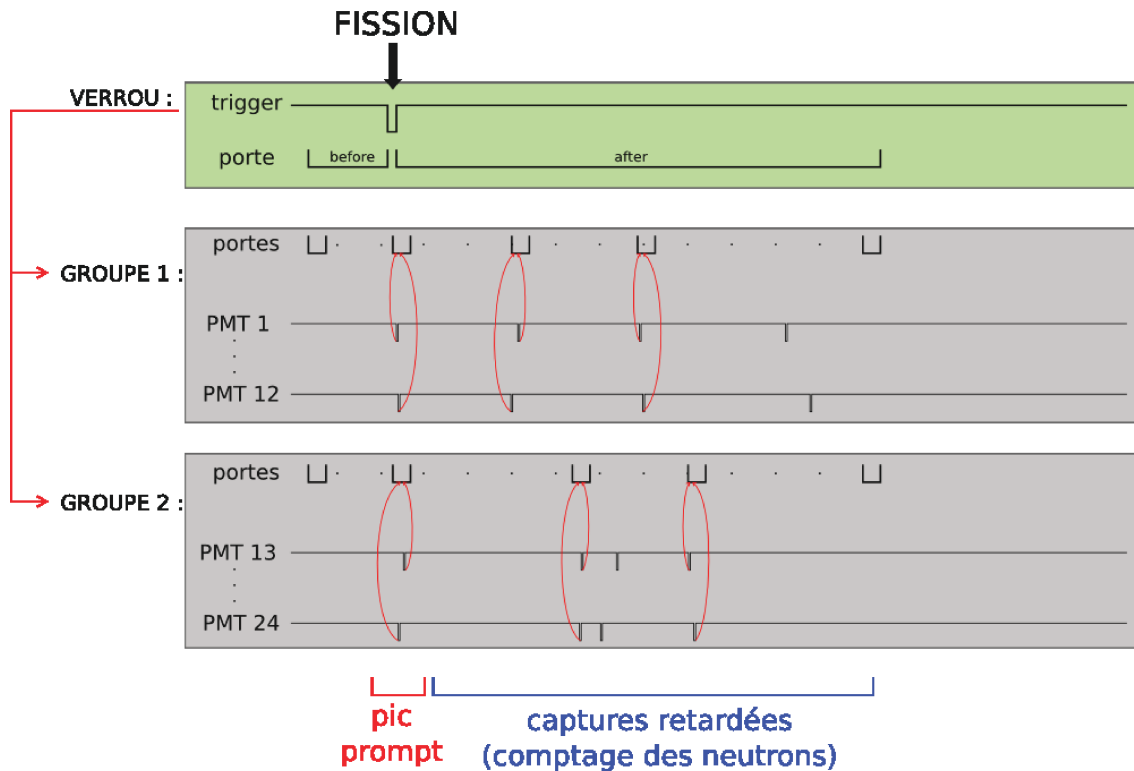


FIGURE 4.9 – Chronogramme simplifié du trigger de l'acquisition dédié à CARMEN.



# Chapitre 5

## Calibration de CARMEN

La lumière de fluorescence émise suite au dépôt d'énergie par des rayonnements gamma ou des neutrons est partiellement collectée sur différents tubes photomultiplicateurs. Nous mesurons alors la somme de la charge des signaux mesurée sur chaque tube photomultiplicateur qui est proportionnelle à l'énergie totale déposée.

Afin de convertir la charge totale mesurée en énergie, nous devons nous assurer qu'une même quantité de photons collectés par différentes photocathodes induise des signaux dont la charge est identique par l'alignement des gains de chaque tube photomultiplicateur. Nous pourrons ensuite calibrer la mesure de la charge en énergie gamma et neutron.

### 5.1 Alignement des gains

Nous pouvons réaliser un ajustement du gain grâce à une propriété des tubes photomultiplicateurs : le courant d'obscurité. Dans la gamme en tension de fonctionnement des tubes photomultiplicateurs que nous utilisons, entre 1000 V et 3000 V, le courant d'obscurité provient majoritairement de phénomènes d'émissions thermoïoniques par la photocathode et les dynodes du tube. Ces matériaux peuvent émettre spontanément des électrons par agitation thermique. Ils sont ensuite multipliés dans l'étage multiplicateur du tube et donnent lieu à un courant de quelques nanoampères. Du fait d'une plus grande surface d'émission et d'une plus grande multiplication, les électrons thermiques proviennent majoritairement de la photocathode et de la première dynode. Le spectre en charge de ces émissions thermiques est de type électron unique, caractéristique de l'accélération et de la multiplication par le tube d'un électron émis par la photocathode. Un exemple de spectre est présenté sur la figure 5.1 pour un tube photomultiplicateur Photonis XP4512B avec une haute tension de  $-2000$  V. Le centroïde de la distribution correspond à la charge moyenne mesurée suite à l'émission d'un photoélectron de la photocathode. Cette valeur varie avec le gain de l'étage multiplicateur et donc avec la tension appliquée au tube photomultiplicateur.

Un ajustement de la tension permet d'aligner le centroïde de ces distributions sur une même valeur pour chaque tube photomultiplicateur de CARMEN comme présenté sur la figure 5.2. Les tensions appliquées varient entre  $-1700$  V et  $-2400$  V, et on peut remarquer que deux tubes photomultiplicateurs (un sur chaque hémisphère) ne sont pas alignés. Ils ne présentaient pas un spectre de photoélectron unique satis-

faisant malgré la montée en tension. La construction de CARMEN avec des tubes en contact direct avec le liquide scintillant complique les vérifications ou changements de tubes ; ils seront donc conservés en l'état pour nos mesures.

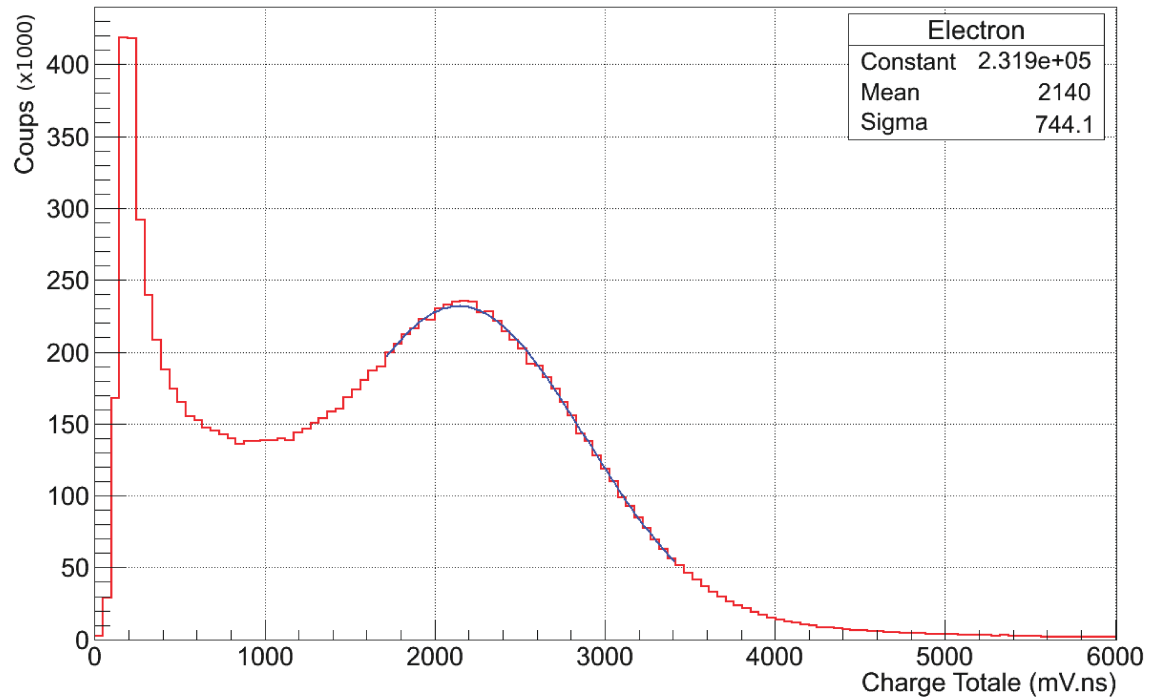


FIGURE 5.1 – Spectre d'électron unique d'un tube Photonis XP4512B à une tension de  $-2000$  V.

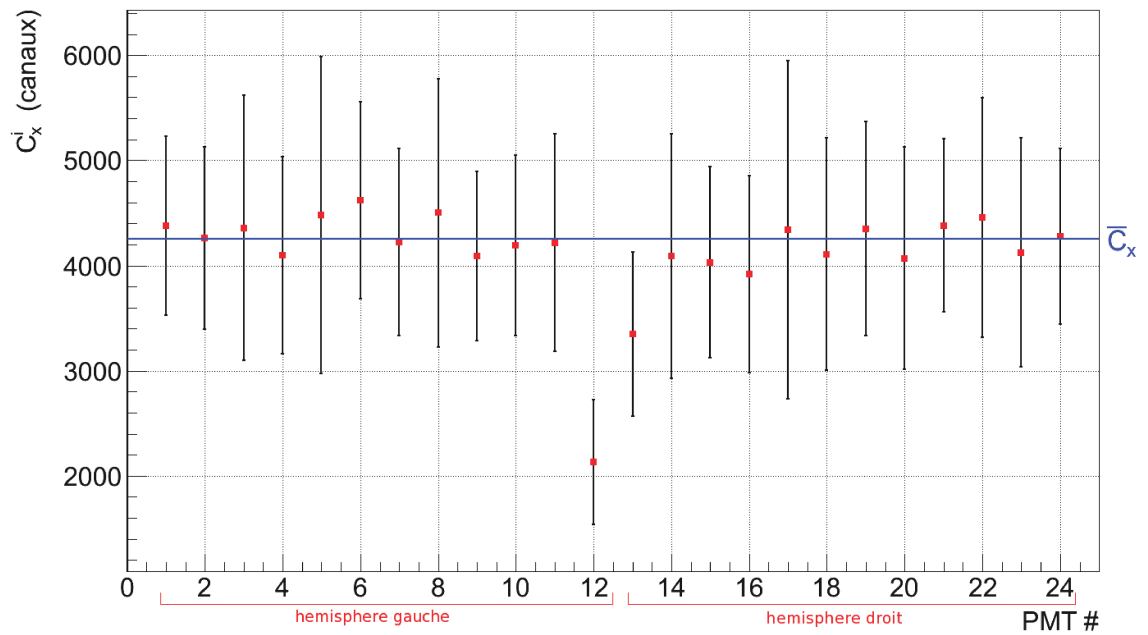


FIGURE 5.2 – Comparaison des centroïdes de distribution du photoélectron unique pour chaque tube photomultiplicateur de CARMEN (en rouge) avec leur moyenne (en bleu) après ajustement des tensions.

## 5.2 Calibration en énergie gamma

Pour calibrer en énergie gamma chaque hémisphère de CARMEN, nous avons utilisé différentes sources radioactives émettant deux rayonnements gamma en coïncidence telles que :  $^{207}\text{Bi}$ ,  $^{60}\text{Co}$  et  $^{88}\text{Y}$ . Ces sources permettent une calibration en énergie entre 570 keV et 1,836 MeV ; les énergies exactes des différentes sources utilisées sont précisées dans le tableau 5.1. Grâce à une détection en coïncidence entre un hémisphère de CARMEN et un détecteur BGO, lorsque nous mesurons l'énergie d'un rayonnement gamma avec le BGO, nous mesurons également l'énergie du rayonnement gamma émis en coïncidence avec un hémisphère de CARMEN. La figure 5.3 représente un exemple de coïncidence avec une source de  $^{60}\text{Co}$  émettant deux rayonnements gamma d'énergie 1173 keV et 1332 keV. Elle représente l'énergie mesurée par l'hémisphère droit de CARMEN en fonction de l'énergie mesurée par le BGO.

Nous avons également utilisé une source radioactive Am-Be pour un calibrage à plus haute énergie. Cette dernière émet des neutrons en coïncidence avec des rayonnements gamma de 4,4 MeV. Sur le même principe, nous détectons les neutrons émis par la source Am-Be grâce à un scintillateur de type NE213, et mesurons les rayonnements gamma de 4,4 MeV émis en coïncidence dans CARMEN.

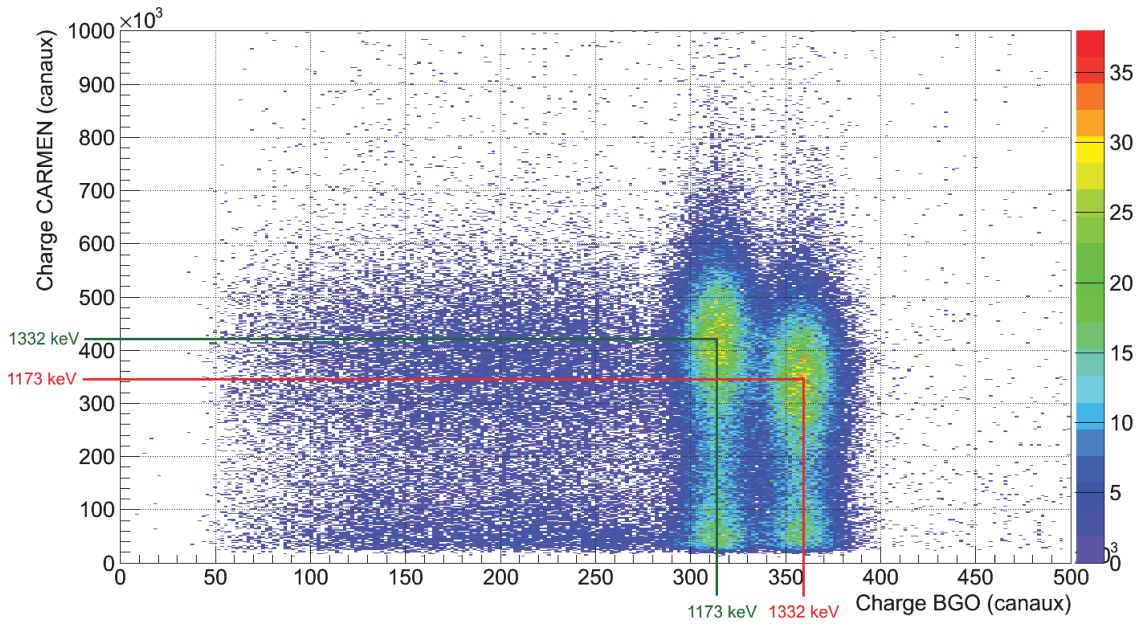


FIGURE 5.3 – Histogramme bidimensionnel représentant l'énergie déposée dans l'hémisphère droit de CARMEN en fonction de l'énergie déposée dans le BGO par les deux rayonnements gamma émis en coïncidence par une source de  $^{60}\text{Co}$ .

On observe alors une linéarité de la réponse de chaque hémisphère aux rayonnements gamma jusqu'à 4,4 MeV, présentées sur la figure 5.4 respectivement pour les hémisphères droit en rouge et gauche en bleu.

$$E_{\gamma}(Q_{tot}^D) = 2,5862 \cdot 10^{-6} \cdot Q_{tot}^D + 0,2717 \quad (5.1)$$

$$E_{\gamma}(Q_{tot}^G) = 3,8441 \cdot 10^{-6} \cdot Q_{tot}^G + 0,4323 \quad (5.2)$$

La figure 5.5 représente la résolution en énergie à mi-hauteur de chaque hémisphère en fonction de l'énergie. Elle est mauvaise à basse énergie, supérieure à 60% à 1,064 MeV, mais s'améliore à plus haute énergie pour atteindre 23,3% et 30,4% à 4,4 MeV, respectivement pour les hémisphères droit et gauche.

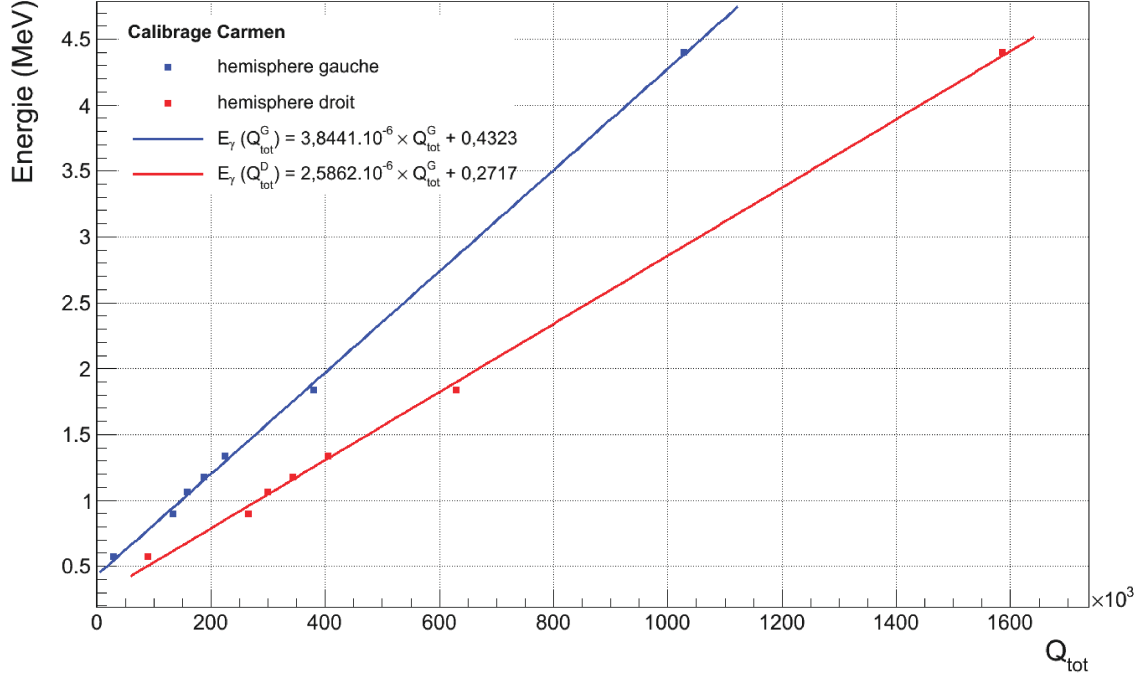


FIGURE 5.4 – Calibration en énergie gamma des hémisphères droit (en rouge) et gauche (en bleu).

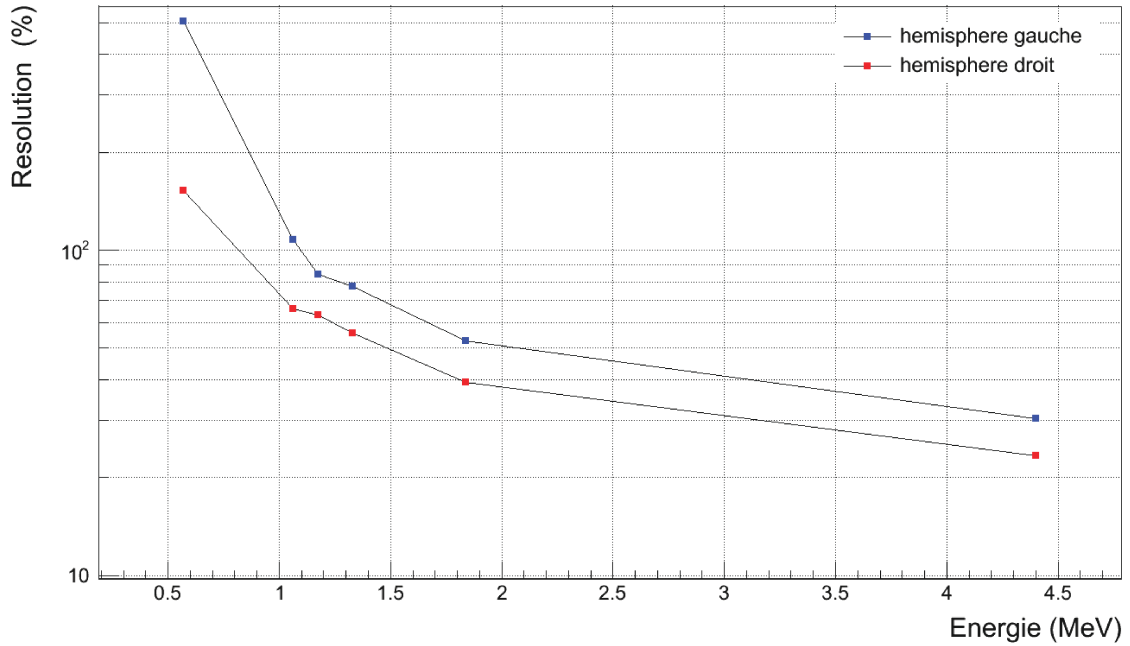


FIGURE 5.5 – Evolution de la résolution en énergie gamma des hémisphères droit et gauche de CARMEN en fonction de l'énergie.

Source	Energie ( keV)
$^{22}\text{Na}$	511
	1275
$^{207}\text{Bi}$	570
	1064
$^{60}\text{Co}$	1173
	1332
$^{88}\text{Y}$	898
	1836

TABLE 5.1 – Energie des rayonnements gamma produits par les sources utilisées pour la calibration de CARMEN.

### 5.3 Remarques : performances du liquide scintillant

Une première remarque que l'on peut faire porte sur la différence des charges mesurées dans chaque hémisphère pour une même énergie déposée dans le liquide. La figure 5.6 représente le rapport entre la charge totale mesurée sur l'hémisphère droit et la charge totale mesurée sur l'hémisphère gauche. Ce rapport est supérieur à 1 sur toute la gamme en énergie et tend vers 1,6. Pour une même quantité d'énergie déposée dans chaque hémisphère, la quantité de photons de scintillation collectée par les tubes photomultiplicateurs de l'hémisphère droit est environ 2 fois plus élevée que par ceux de l'hémisphère gauche.

Afin d'identifier les causes de ce problème, nous avons tout d'abord effectué un bullage à l'argon de l'hémisphère gauche afin de diminuer la quantité d'oxygène éventuellement dissoute dans le liquide et ayant un fort effet de quenching. Aucune amélioration n'a été notée suite au bullage. Nous avons également prélevé un échantillon de liquide scintillant dans chaque hémisphère pour ensuite les comparer dans un système de comptage en tube à essai avec une source de  $^{22}\text{Na}$ . On note une différence inférieure à 3% sur l'emplacement des deux fronts Compton entre les deux échantillons, qui ne correspond pas à l'écart observé sur les hémisphères. Deux hypothèses sont envisagées pour expliquer cet effet. La première hypothèse concerne la peinture réfléchissante qui pourrait avoir subi une dégradation plus importante dans l'hémisphère gauche que dans l'hémisphère droit, diminuant ainsi la collection de lumière des tubes photomultiplicateurs. La seconde hypothèse concerne une dégradation des tubes photomultiplicateurs, qui pourrait être due aux contact direct prolongé des photocathodes et du liquide scintillant. Ces deux hypothèses pourront être vérifiées par inspection des parois internes et des tubes lors d'une vidange de CARMEN.

Notre seconde remarque concerne les performances du scintillateur, indépendamment de l'hémisphère choisi. Nous pouvons calculer un nombre de photoélectrons par méga-électronvolt à partir des mesures de résolution en énergie (par exemple

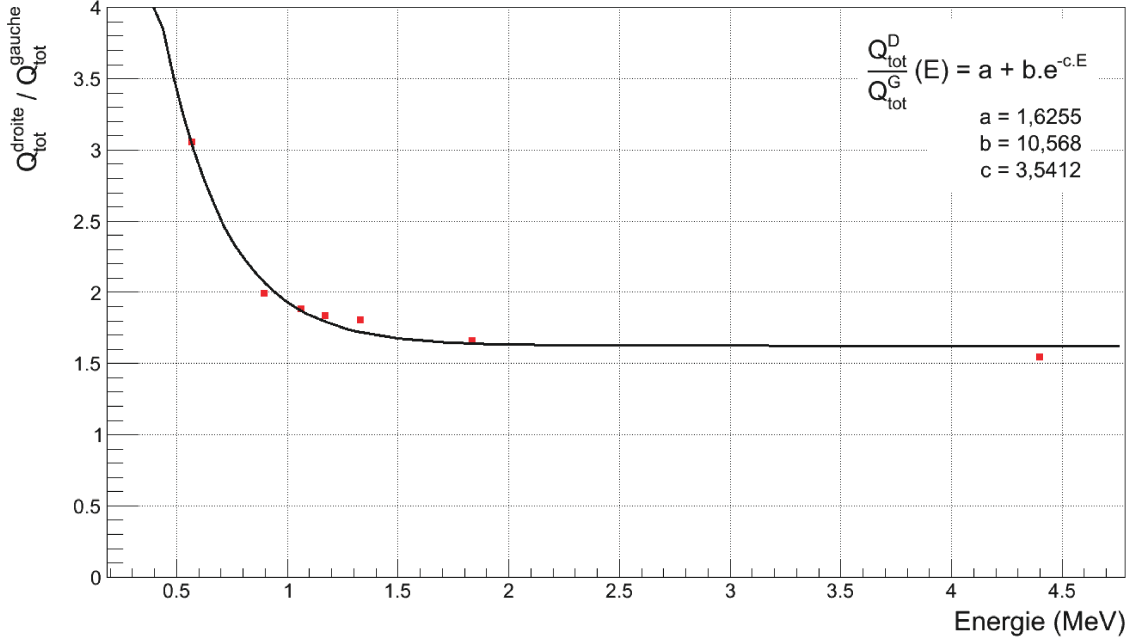


FIGURE 5.6 – Evolution du rapport des charges totales mesurées par l'hémisphère droit et gauche en fonction de l'énergie.

23, 3% FWHM à 4,4 MeV pour l'hémisphère droit) grâce à la relation suivante :

$$N_{phe}^{exp} = \frac{\mu}{\sigma^2} = 23 \text{ photoélectrons/MeV}$$

où  $\mu = 4,4 \text{ MeV}$  est le centroïde de la distribution en énergie,  $\sigma = 0,436 \text{ MeV}$  est l'écart type de cette distribution.

Les données du constructeur du liquide scintillant BC521 utilisé lors de la construction de CARMEN spécifient un rendement en lumière de l'ordre de 68% relatif à l'anthracène, soit 11235 photons/MeV. On peut également estimer un nombre de photoélectrons par méga-électronvolt théorique de la manière suivante :

$$N_{phe}^{th} = 11235 \times \epsilon_{coll} \times QE = 281 \text{ photoélectrons/MeV}$$

où  $\epsilon_{coll} = 10\%$  est l'efficacité de collecte de la lumière de fluorescence par les photomultiplicateurs (dont 5% proviennent de réflexions et 5% de collecte directe par les photocathodes) et  $QE = 25\%$  est l'efficacité quantique des photocathodes bialkali des tubes photomultiplicateurs à la longueur d'onde considérée.

Une telle différence, d'un facteur 12 pour l'hémisphère droit, ne peut pas s'expliquer uniquement par la dégradation de la peinture réfléchissante que l'on a mis en évidence en comparant les deux hémisphères. Deux hypothèses peuvent être envisagées.

### Vieillessement des tubes photomultiplicateurs

La première hypothèse concerne le vieillissement des tubes photomultiplicateurs : les photocathodes pourraient avoir un rendement quantique plus faible que les valeurs fournies par le constructeur. Pour le vérifier, nous avons mesuré les rendements en lumière d'une cellule de BC521 et d'un cristal de NaI avec un tube photomultiplicateur XP4512B (tube de rechange pour CARMEN) avec différentes sources



rayonnement gamma ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$ ). Nous les avons ensuite comparés aux rendements en lumière théoriques afin d'en déduire une valeur expérimentale de l'efficacité quantique de la photocathode. Ces résultats sont regroupés dans le tableau 5.2.

Scintillateur	Source	Energie (keV)	$h\nu/\text{MeV}$ Exp.	$h\nu/\text{MeV}$ Th.	QE Exp.
BC521	$^{241}\text{Am}$	59	1893	11235	4,2%
	$^{241}\text{Na}$	511	1593	11235	3,5%
	$^{137}\text{Cs}$	662	2143	11235	4,8%
NaI	$^{241}\text{Am}$	59	17472	16522	26,4%
	$^{137}\text{Cs}$	662	14482	16522	21,9%
	$^{60}\text{Co}$	1173	14156	16522	21,4%
		1332	14057	16522	21,3%

TABLE 5.2 – Mesures de rendements de fluorescence du BC521 et du NaI avec un tube photomultiplicateur XP4512B.

Le rendement quantique mesuré de la photocathode vaut en moyenne 23% avec le cristal de NaI, proche de la valeur théorique de 25%. Par contre, celui mesuré avec la cellule de BC521 vaut 4,2%. Il semblerait donc que le vieillissement des photocathodes des tubes de CARMEN ne soit pas significatif et ne puisse pas expliquer la dégradation des performances de CARMEN par rapport aux données constructeur. Nous ne pourrions en être définitivement certains que lorsque nous aurons vidangé CARMEN. Chaque hémisphère disposant d'un hublot d'inspection, il n'est pas exclu pour le moment que les tubes présents sur CARMEN aient été détériorés par des fuites de lumière lors de leur fonctionnement.

### Vieillissement du liquide scintillant

La seconde hypothèse concerne le vieillissement du liquide scintillant BC521 et la diminution de la longueur d'atténuation des photons dans le BC521. Les mesures précédentes ont été réalisées avec une cellule cylindrique de BC521 de diamètre et d'épaisseur 5 cm et montrent un rendement de fluorescence du liquide valant en moyenne 1900 photons/MeV, soit 15% de la valeur annoncée par le constructeur. Cela montre bien une dégradation du scintillateur et, CARMEN ayant une épaisseur de liquide de 60 cm, cet effet pourrait être plus important que celui mesuré avec la cellule cylindrique.

A notre connaissance, dans la littérature, il n'existe pas de données précises sur la longueur d'atténuation des photons dans le BC521, et sur son évolution sur de longues périodes, près de 15 ans dans le cas de CARMEN. Les données constructeur spécifient une valeur supérieure à 4 m. Différentes valeurs comprises entre 4 m et 12 m à 430 nm et 440 nm ont été mesurées pour des cocktails incluant du pseudocumène produit par Bicorn mélangé à d'autres solvants [76, 100]. On peut citer également les travaux de M.C. Johnson [47] qui fournit des données sur la longueur d'atténuation des photons dans du pseudocumène pur, pour des longueurs d'ondes

entre 270 nm et 500 nm et de l'ordre de 7 m à 430 nm. Enfin, à titre d'exemple, des mesures effectuées sur un scintillateur à base de mélange d'hydrocarbures et de solvant aromatique par *M. Apollonio et al.* [4] montrent une diminution de la longueur d'atténuation de leur liquide scintillant qu'ils ont paramétrisée sous forme empirique en fonction de la longueur d'atténuation initiale du liquide. Ils observent une diminution de l'ordre de 60% de la longueur d'atténuation au bout d'un an. De même, *G. Piepke et al.* [76] observent une diminution de la longueur d'atténuation à 440 nm de l'ordre de 40% à 50% sur leurs scintillateurs basés sur un mélange de BC521 et d'huile minérale. Aucune données n'existent à propos du BC521 pur, mais elles seraient très utiles pour les détecteurs à gros volume destinés à une utilisation sur une longue période tels que CARMEN.

Des mesures de radioluminescence et de transmission des photons dans un échantillon de BC521 provenant des hémisphères droit (en rouge) et gauche (en bleu) de CARMEN ont été réalisées par M. Hamel (CEA/DRT/LIST/DCSI/LCAE). Elles sont présentées sur la figure 5.7. Les traits pleins correspondent aux spectres de radioluminescence du BC521 suite à une excitation par une source de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  émettant des électrons de 546 keV et 2,28 MeV. Les spectres sont piqués autour de 430 nm et l'émission de lumière de l'hémisphère gauche est légèrement plus faible de l'ordre de 4% que celle de l'hémisphère droit. Les traits pointillés correspondent à la transmission des photons à travers 5 cm de liquide en fonction de leur longueur d'onde. Elle est très faible en-dessous de 400 nm et entre 50% et 60% à 430 nm. Une grande partie des photons de scintillation est donc absorbée par le liquide.

Ces mesures nous permettent également de calculer la longueur d'atténuation des photons en fonction de leur longueur d'onde, représentée sur la figure 5.8 pour les deux hémisphères. Elle vaut entre 7 cm et 10 cm autour de 430 nm. Le rayon d'un hémisphère de CARMEN valant 60 cm, la quantité de photons de scintillation collectée par les tubes photomultiplicateurs est donc fortement diminuée par absorption dans le liquide.

Ces mesures semblent donc confirmer l'hypothèse d'une dégradation du scintillateur au cours du temps. De plus, les faibles différences entre les échantillons de chaque hémisphère ne sont pas suffisamment importantes pour expliquer la différence observée sur la quantité de lumière collectée sur chaque hémisphère. Cela conforte l'idée d'une dégradation de la peinture réfléchissante, qui pourra être inspectée à l'occasion d'un changement de tubes photomultiplicateurs.

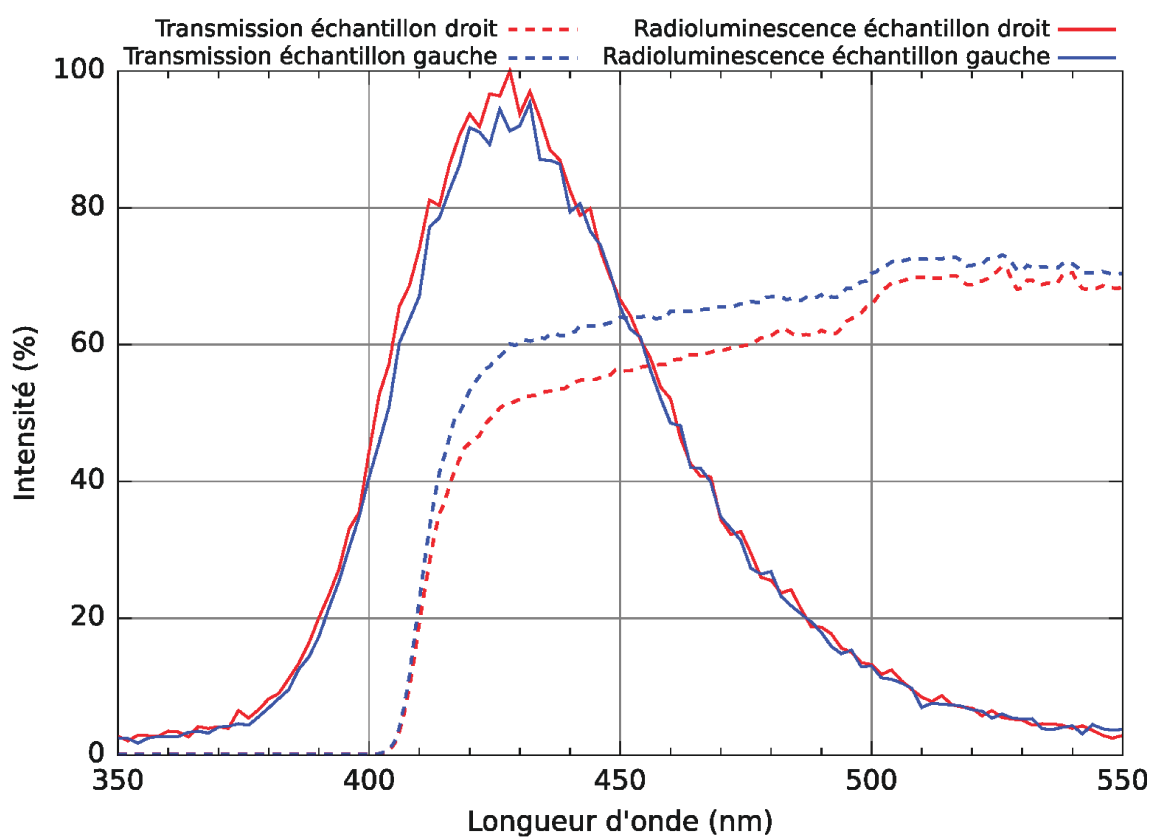


FIGURE 5.7 – Spectres de radioluminescence du BC521 par excitation avec une source de Sr/Y (trait plein) et de transmission des photons dans 5 cm de BC521 en fonction de leur longueur d'onde (traits pointillés). Les échantillons de liquide proviennent des hémisphères droit (rouge) et gauche (bleu) de CARMEN.

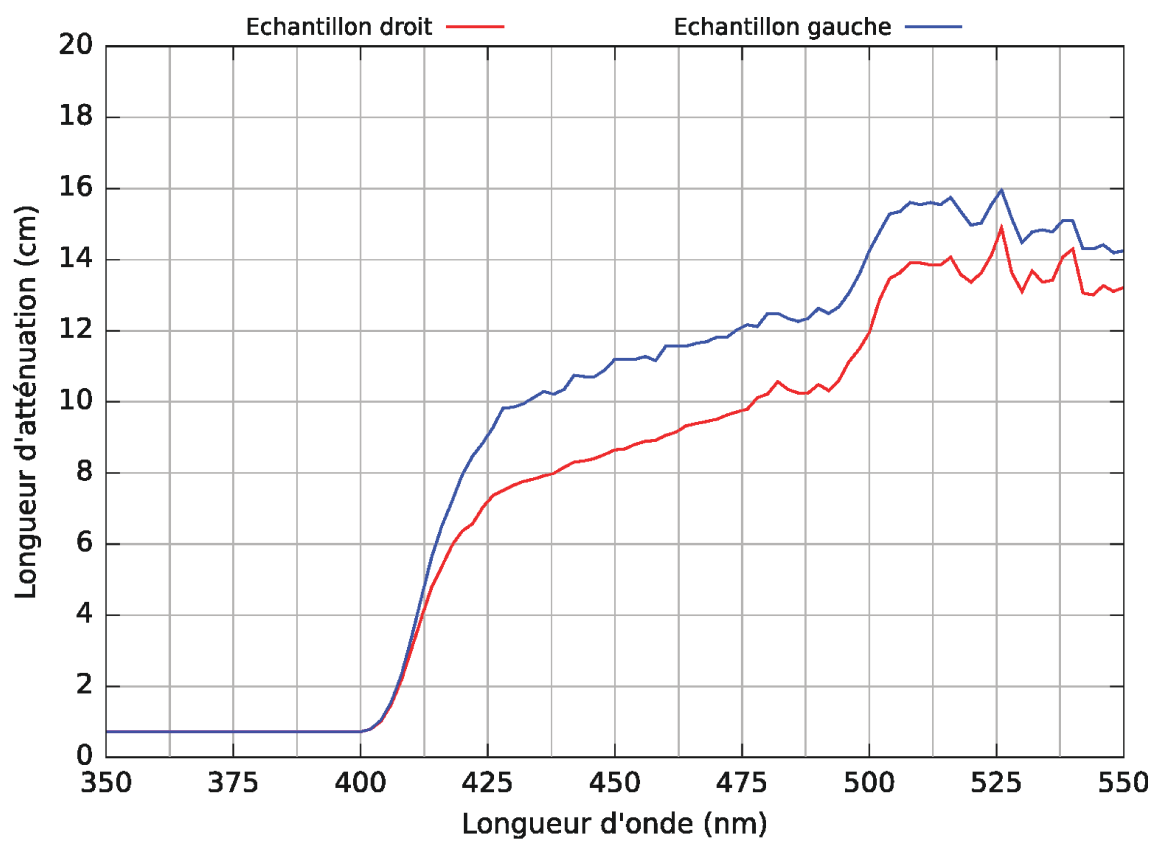


FIGURE 5.8 – Longueur d'atténuation des photons dans du BC521 en fonction de leur longueur d'onde (hémisphère droit en rouge et gauche en bleu).

## 5.4 Calibration en énergie neutron

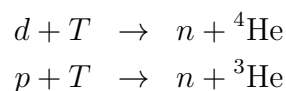
La calibration en énergie neutron des deux hémisphères de CARMEN peut se faire selon deux méthodes.

La première méthode est directe. Elle consiste à convertir la charge totale d'un signal induit par un neutron en énergie neutron. Pour cela nous avons besoin de déterminer une équivalence proton–électron car la calibration est réalisée par rapport à une calibration absolue réalisée à l'aide de sources gamma. Cette méthode consiste donc à caractériser la réponse en lumière du scintillateur aux neutrons et aux rayonnements gamma afin de calculer une équivalence entre la lumière associée à un dépôt d'énergie induit par un rayonnement gamma et par un neutron. La calibration de CARMEN ne nécessite ensuite aucune source de neutrons car une simple calibration en énergie gamma suffit pour calibrer le détecteur en énergie neutron grâce à cette équivalence.

La seconde méthode, dite du temps de vol, utilise quant à elle une source de neutrons. A l'aide d'une source radioactive de type Am-Be qui émet des neutrons selon un spectre continu en énergie ainsi que des rayonnements gamma, cette méthode consiste à détecter ces rayonnements gamma par un BGO en coïncidence avec les neutrons par un hémisphère de CARMEN. La mesure du temps de vol des neutrons permet alors de calculer leur énergie et de l'associer à la charge mesurée dans l'hémisphère de CARMEN.

### 5.4.1 Méthode de l'équivalence proton–électron

De la même manière que lors d'une calibration en énergie gamma, nous pouvons mesurer la réponse en lumière d'un scintillateur aux neutrons avec des sources de neutrons monoénergétiques. Nous avons donc réalisé ces mesures sur l'accélérateur 4 MV de Bruyères-le-Châtel qui permet de produire des neutrons monoénergétiques grâce à différentes réactions de production telles que :



Il suffit ensuite de faire varier l'énergie du projectile (deuton ou proton) pour accéder à différentes énergies neutrons. Cependant, les changements d'énergie du projectile nécessitent du temps pour régler le faisceau et les énergies comprises entre 6 et 15 MeV ne sont pas accessibles sur cet accélérateur. Afin de nous affranchir de cette dernière limitation, nous avons utilisé une méthode de coïncidence entre le détecteur neutron à calibrer et un second détecteur neutron qui détecte le neutron diffusé dans le premier.

La figure 5.9 représente le dispositif de coïncidence mis en place. L'échantillon de pseudocumène est contenu dans une cellule en aluminium de 5,08 cm de diamètre couplée optiquement à un tube photomultiplicateur Hamamatsu R6231-100. Il est situé dans l'axe du faisceau. Un détecteur BC501 est positionné en direction du centre de la cellule de pseudocumène. Le faisceau n'étant pas collimaté, une barre d'ombre protège le BC501 des neutrons provenant directement de la cible de production.

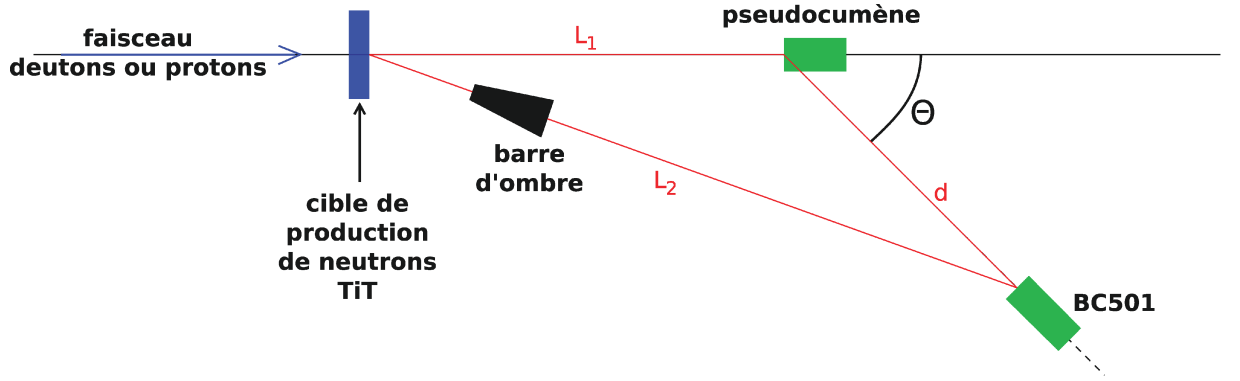


FIGURE 5.9 – Schéma du dispositif de coïncidence entre une cellule de pseudocumène et un détecteur BC501 sur l'accélérateur 4 MV de Bruyères-le-Châtel.

L'énergie  $E_n$  du neutron diffusé dans la cellule de pseudocumène et l'énergie du proton de recul  $E_p$  sont directement reliées à l'énergie du neutron incident  $E_n^0$  par son angle de diffusion  $\theta$  :

$$\begin{aligned} E_n &= E_n^0 \cdot \cos^2 \theta \\ E_p &= E_n^0 - E_n \end{aligned}$$

L'énergie du neutron incident  $E_n^0$  est fixée par la réaction de production de neutrons et l'énergie du projectile utilisée. Dans un premier cas, des deutons d'énergie 1 MeV frappent une cible de titane tritiée à  $1 \text{ mg cm}^{-2}$  afin de produire des neutrons d'énergie 16,6 MeV dans l'axe du faisceau. Dans un second cas, des protons d'énergie 3 MeV frappent la cible de titane tritiée à  $1 \text{ mg cm}^{-2}$  et produisent des neutrons d'énergie 2,18 MeV dans l'axe du faisceau.

Nous pouvons ensuite sélectionner l'énergie  $E_n$  du neutron diffusé (et donc du proton de recul) en faisant varier uniquement l'angle entre l'axe BC501/pseudocumène et l'axe du faisceau, énergie que nous calculons par temps de vol du neutron entre le pseudocumène et le BC501 grâce à la relation 5.4.

Nous mesurons alors une relation entre l'énergie déposée par le neutron via le proton de recul  $E_p$  et la lumière émise par le scintillateur mesurée par la charge totale  $Q_{tot}$  (en canaux) :

$$E_p = -\frac{2027,82}{Q_{tot}} + 4,40513 \cdot 10^{-5} \cdot Q_{tot} + 1,19538$$

Dans un second temps, nous mesurons la réponse de la cellule de pseudocumène aux sources de rayonnements gamma d'énergies connues telles que  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{207}\text{Bi}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{88}\text{Y}$ . Nous obtenons une relation entre la charge totale  $Q_{tot}$  et l'énergie déposée par les rayonnements gamma  $E_\gamma$  :

$$Q_{tot} = 42246,8 \cdot E_\gamma - 2667,81$$

Des deux relations précédentes, nous déduisons une équivalence, à quantité de lumière égale, entre l'énergie déposée par neutron et par un rayonnement gamma dans du pseudocumène dopé au gadolinium :

$$E_n = -\frac{2118,54}{42246,8 \cdot E_\gamma - 2667,81} + 1,8610 \cdot E_\gamma + 1,0779 \quad (5.3)$$

Le rendement en lumière associé aux neutrons est donc plus faible que celui associé aux rayonnements gamma, avec par exemple une émission de lumière due à un neutron de 5 MeV comparable à celle d'un rayonnement gamma de 2,18 MeV. L'ordre de grandeur de nos mesures est par ailleurs en bon accord avec différentes mesures [42, 7, 88, 93, 17, 41, 68, 3, 21, 56, 22] réalisées sur des scintillateurs NE213 et comparées sur la figure 5.10.

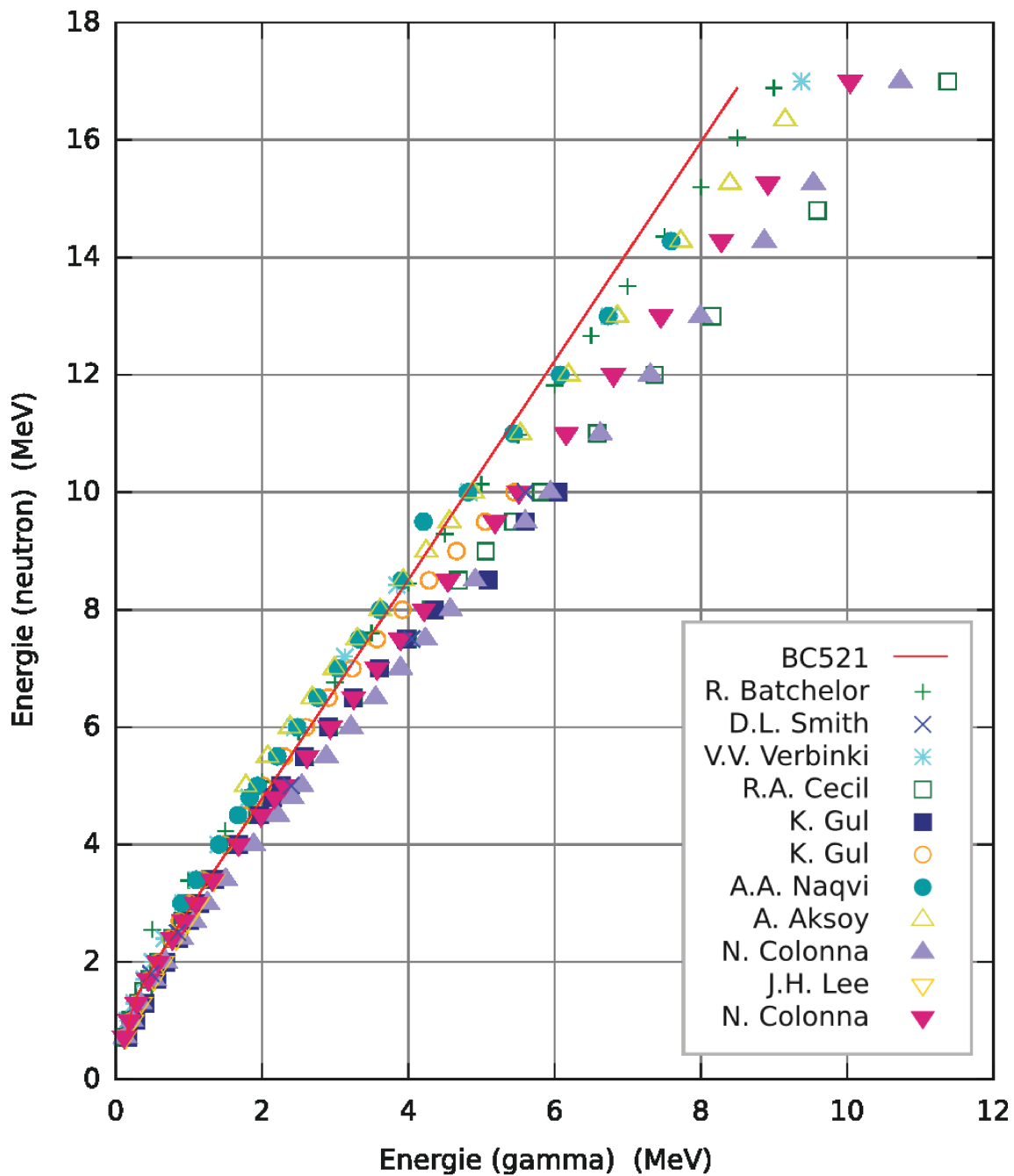


FIGURE 5.10 – Comparaison des équivalences proton-électron mesurées pour le BC521 (trait plein) et pour le NE213 (points) issues des références [7, 88, 93, 17, 41, 68, 3, 21, 56, 22]

### 5.4.2 Méthode du temps de vol

Cette seconde méthode utilise la mesure du temps de vol des neutrons entre un détecteur BGO et un hémisphère de CARMEN comme représenté sur la figure 5.11.

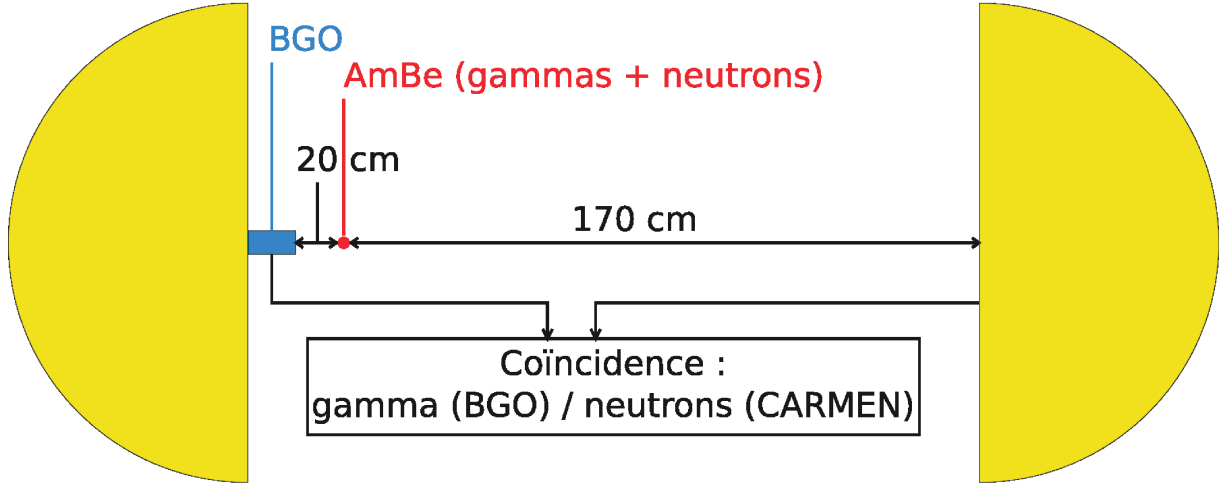


FIGURE 5.11 – Schéma du dispositif de coïncidence entre un hémisphère de CARMEN et un détecteur BGO avec une source Am-Be émettant des neutrons et des rayonnements gamma en coïncidence.

Une source Am-Be de neutrons est placée entre un détecteur BGO et l'hémisphère de CARMEN à calibrer. En sélectionnant les rayonnements gammas de 4.4 MeV détectés par le BGO, on peut mesurer le temps vol ( $\Delta t = t_{CARMEN} - t_{BGO}$ ) des neutrons détectés dans l'hémisphère de CARMEN et en déduire l'énergie des neutrons grâce à la relation :

$$E_n = \frac{1}{2} \cdot m_n v^2 = \frac{(m_n c^2) \cdot d^2}{2 \cdot c^2 \cdot \Delta t^2} \quad (5.4)$$

où  $m_n c^2 = 939,6 \text{ MeV}/c$ ,  $d$  la distance source-hémisphère et  $c = 30 \text{ cm/ns}$ .

La position de la source influe sur la mesure car le grand angle solide d'un hémisphère de CARMEN provoque une erreur sur la mesure de l'énergie du neutron selon où le neutron est détecté dans CARMEN. Pour un neutron d'énergie donnée, s'il est détecté proche des bords de l'hémisphère, la base de vol est plus importante que la distance entre la source et le centre de l'hémisphère. Son temps de vol est donc plus important et l'énergie déduite à partir de l'équation précédente est sous estimée. Pour minimiser cette erreur, la source doit être placée le plus loin possible de l'hémisphère. La distance entre les hémisphères étant limitée à 2 m, la proximité de la source à l'autre hémisphère va occasionner des retours de neutrons et polluer la mesure. Nous avons donc du choisir un compromis entre la minimisation de l'incertitude sur la base de vol et la possibilité de séparation des retours de neutrons par temps de vol. La distance choisie  $d = 170 \text{ cm}$  permet d'avoir une erreur maximale de l'ordre de 11% avec une telle base de vol et un temps de vol des retours de neutrons supérieur à celui des neutrons directs d'au moins 18 ns.

La figure 5.12 représente les spectres en énergie des neutrons émis en coïncidence avec des rayonnements gamma de 4,4 MeV par la source Am-Be. La mesure



par temps de vol avec l'hémisphère droit de CARMEN est en bleu. Une mesure effectuée avec un NE213 placé au centre de la chambre à réaction de l'hémisphère est présentée en rouge.

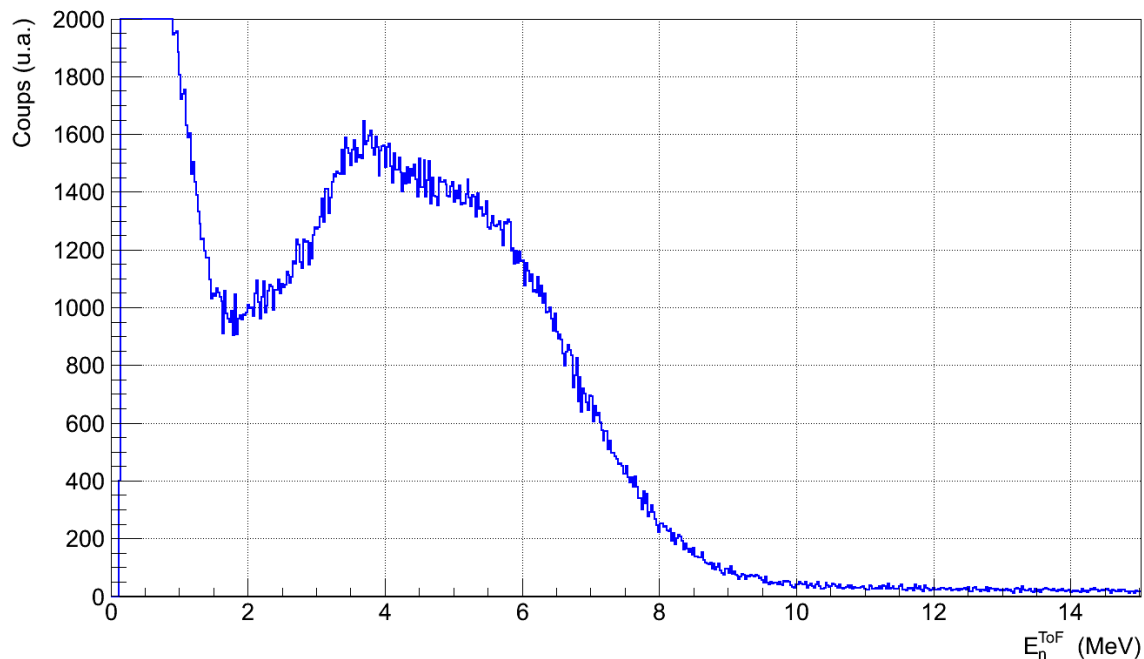


FIGURE 5.12 – Spectre en énergie, mesuré par temps de vol, des neutrons émis en coïncidence avec un rayonnement gamma de 4,4 MeV et détectés par l'hémisphère droit de CARMEN.

### 5.4.3 Comparaison des calibrations

Idéalement, ces deux méthodes de calibration devraient être équivalentes mais elles possèdent chacune des inconvénients. Comme nous l'avons remarqué lors de la calibration en énergie gamma, le liquide scintillant a vieilli et la longueur d'atténuation des photons a fortement diminué. Cela dégrade la résolution en énergie et la précision de la calibration via l'équivalence proton-électron. Avec la méthode par temps de vol, la base de vol des neutrons est limitée par l'espacement entre les deux hémisphères et cela augmente l'erreur relative sur la mesure de l'énergie du neutron. De plus, la proximité du sol, d'une casemate en béton et de l'autre hémisphère induit des retours de neutrons non négligeables du fait du grand volume de liquide scintillant et dégrade également la résolution en énergie des neutrons. Il est donc intéressant de comparer ces méthodes afin de vérifier leur équivalence et de choisir la plus adaptée.

Nous pouvons les comparer grâce aux mesures réalisées lors de la calibration par temps de vol. Lors de ces mesures, le neutron est ralenti dans le liquide scintillant jusqu'à ce qu'il dépose toute son énergie mais ce sont les premières diffusions sur les protons qui nous donnent la référence en temps permettant de mesurer le temps de vol. Cependant, nous pouvons également traiter les signaux de fluorescence provenant du ralentissement des neutrons et mesurer l'énergie par intégration de charge.

Nous mesurons ainsi une charge totale  $Q_{tot}$  que nous convertissons en énergie neutron grâce à la calibration gamma (5.1) et à l'équivalence proton-électron (5.3).

Nous pouvons ainsi tracer un histogramme bi-dimensionnel tel que présenté sur la figure 5.13. Il représente l'énergie du neutron mesurée par l'hémisphère droit de CARMEN par intégration de charge en abscisse, et son énergie mesurée par temps de vol en ordonnée. Nous observons une corrélation non linéaire. L'énergie mesurée par intégration de charge est plus faible que celle mesurée par temps de vol. Cet effet provient du vieillissement du scintillateur qui dégrade fortement la résolution en énergie et la précision de la calibration via l'équivalence proton-électron. Nous voyons que les deux méthodes ne sont pas en accord. Il apparaît impératif de remédier au mauvais fonctionnement de CARMEN, car en l'état le détecteur ne permet pas de réaliser des mesures calorimétriques. Ceci est valable en neutron, mais également en gamma.

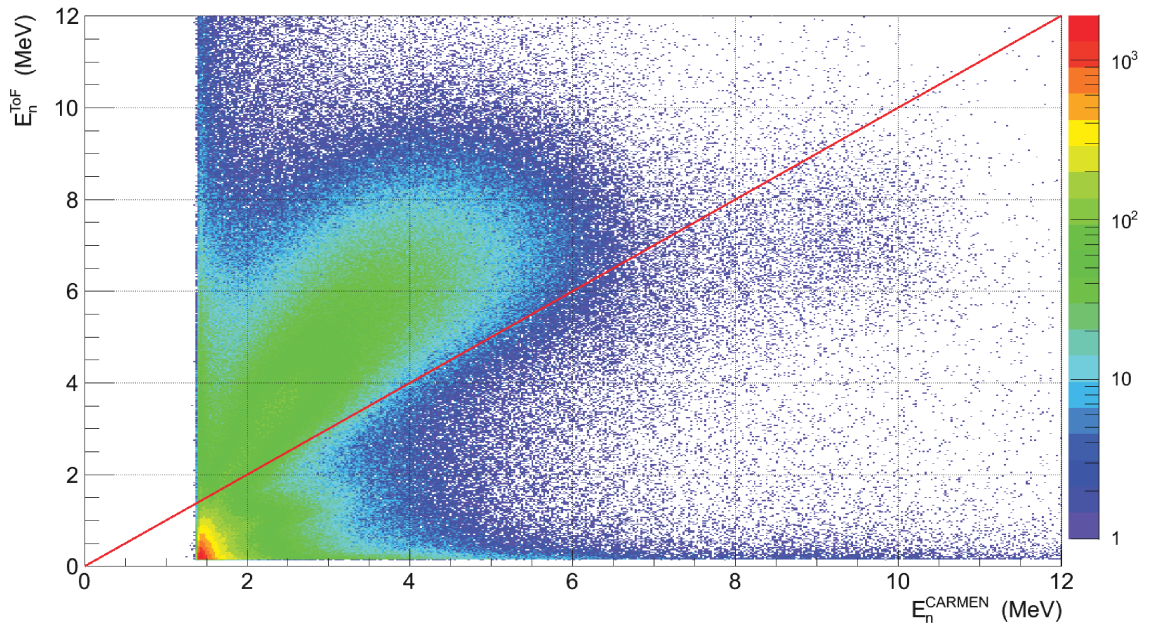


FIGURE 5.13 – Figure de corrélation entre l'énergie mesurée dans CARMEN par temps de vol et par intégration de charge en coïncidence avec un BGO avec une source Am-Be. L'axe des abscisses représente l'énergie neutron par intégration de charge, l'axe des ordonnées l'énergie neutron par temps de vol et la droite rouge représente  $E_n^{ToF} = E_n^{CARMEN}$ .

Afin d'estimer l'impact des retours de neutrons sur notre calibration, des simulations Monte Carlo à l'aide du code MCNPX 2.6 [53] ont été effectuées en recréant les conditions du calibrage. Le dispositif expérimental et son environnement ont été simulés tel qu'on peut le voir sur les figures F.1 et F.2 de l'annexe F.1 en annexe. Une source de neutrons de type Am-Be a été utilisée (spectre en énergie présenté sur la figure F.3 de l'annexe F.2). Les résultats de ces simulations sont présentés sur la figure 5.14 représentant l'énergie  $E_n^{ToF}$  du neutron calculée par temps de vol sur l'axe des ordonnées, et l'énergie déposée  $E_n^{CARMEN}$  par le neutron dans l'hémisphère droit, convoluée avec la résolution en énergie expérimentale, sur l'axe des abscisses.

Nous observons bien la relation linéaire  $E_n^{ToF} \simeq E_n^{CARMEN}$  attendue mais éga-

lement une contribution à basse énergie. Cette contribution provient des retours neutrons du sol, de la casemate et de l'hémisphère gauche comme on peut le voir sur la figure 5.15 où sont détaillées chacune de ces contributions. La plus importante provient de l'hémisphère gauche qui contribue à hauteur de 28% puis de la casemate pour 20% et du sol pour 17% des retours de neutrons.

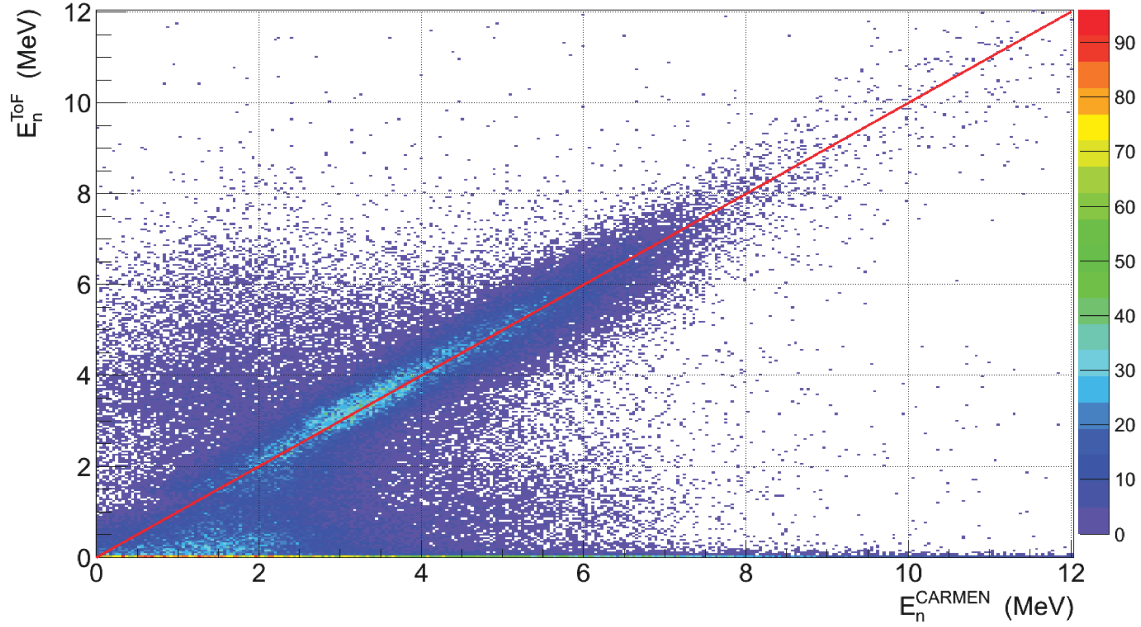


FIGURE 5.14 – Figure de corrélation entre l'énergie mesurée dans CARMEN par temps de vol et par dépôt d'énergie dans CARMEN, issue de simulations MCNPX v2.6. L'axe des abscisses représente l'énergie déposée par le neutron dans l'hémisphère droit de CARMEN, l'axe des ordonnées l'énergie neutron par temps de vol et la droite rouge représente  $E_n^{ToF} = E_n^{CARMEN}$ .

Le spectre en temps de vol des neutrons direct s'étend entre environ 50 ns et 150 ns. Les retours de neutrons les plus énergétiques auront un temps de vol supérieur à 68 ns. Ils ne peuvent donc pas être séparés par temps de vol et vont polluer la mesure du spectre des neutrons directs. Cette calibration est donc loin d'être idéale. Pour l'améliorer, nous devons dissocier et déplacer les deux hémisphères. Il serait alors possible de calibrer chaque hémisphère indépendamment, loin de la casemate et sur une fosse neutron pour supprimer tous ces retours de neutrons.

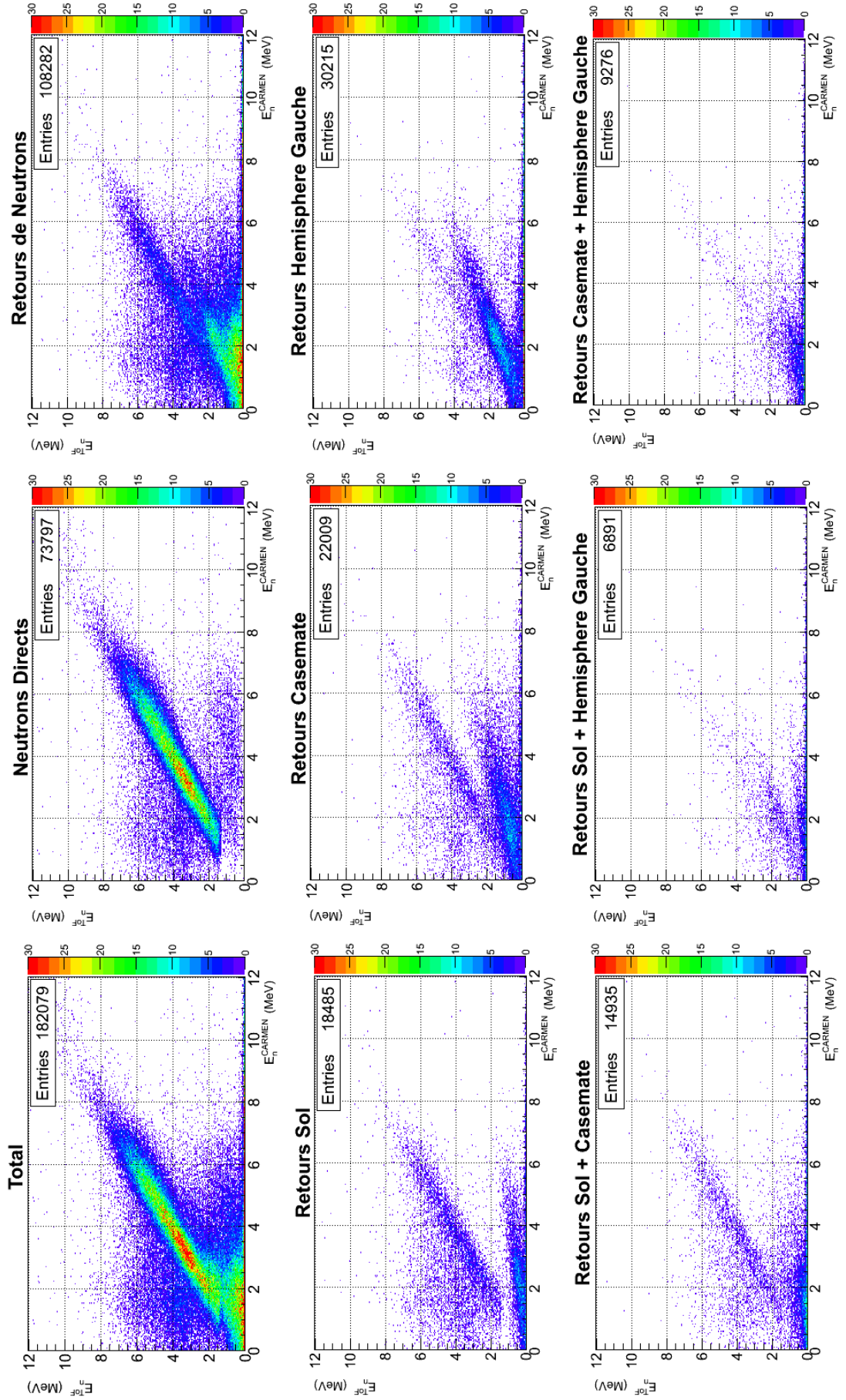


FIGURE 5.15 – Détail des contributions de retours de neutrons.

# Chapitre 6

## Etude préliminaire de la calorimétrie avec CARMEN

L'objectif des mesures sur la fission avec CARMEN est d'obtenir différents observables tels que l'énergie totale gamma rayonnée, l'énergie cinétique des fragments de fission, la multiplicité de neutrons, et ce pour une même fission. Nous étudions également la possibilité d'accéder à l'énergie totale neutron émise lors de la fission. Cependant, de telles mesures de calorimétrie n'ont jamais été réalisées avec CARMEN, et comme nous l'avons présenté au chapitre 4, les informations sur l'énergie totale gamma et l'énergie totale neutron déposées dans CARMEN sont regroupées dans le pic prompt. Il est donc nécessaire de déterminer s'il est possible d'extraire ces énergies totales du pic prompt.

Pour y parvenir, nous devons nous intéresser à la séparation des neutrons et des rayonnements gamma par temps de vol au sein du pic prompt. Si on prend l'exemple de CARMEN, lorsqu'une fission a lieu au centre de sa chambre à réaction, les rayonnements gamma et les neutrons traversent une épaisseur de 15 cm d'air et 5 mm de fer avant de pouvoir interagir avec le scintillateur. Un rayonnement gamma mettra environ 0,5 ns pour parcourir cette distance alors que des neutrons de 0,5 MeV, 2 MeV et 10 MeV mettront respectivement 16 ns, 8 ns et 3,5 ns. Ainsi, au sein du pic prompt qui dure quelques centaines de nanosecondes, la contribution des neutrons et des rayonnements gamma varie selon l'intervalle de temps considéré ; la contribution des rayonnements gamma est plus importante dans les premières nanosecondes par exemple. Si l'on souhaite extraire avec précision les énergies totales gamma et neutron, il est alors nécessaire de quantifier leur contribution au signal prompt.

Par conséquent, nous avons réalisé une étude du pic prompt de CARMEN, grâce à des simulations Monte Carlo avec le code MCNPX 2.6 [53], dans le but d'optimiser les mesures d'énergie par intégration du pic prompt.



## 6.1 Etude du pic prompt par simulation Monte Carlo

### 6.1.1 Description de la simulation

Ces simulations ont été réalisées avec des sources isotropes de neutrons et de rayonnements gamma placées au centre de CARMEN. De premières simulations ont été réalisées avec des sources mono-énergétiques de neutrons et de rayonnements gamma dont l'énergie correspond aux énergies moyennes des neutrons et des rayonnements gamma émis lors d'une fission, respectivement 2 MeV et 1 MeV.

Les simulations que nous allons vous présenter ici ont été réalisées avec des sources plus réalistes utilisant des spectres de neutrons et de gammas de fission de formes maxwelliennes :

$$P(E) = k \cdot \sqrt{E} \cdot e^{\frac{-E}{a}}$$

de température  $a = 0,68$  MeV pour les rayonnements gamma, et  $a = 1,3162$  MeV pour les neutrons. On obtient ainsi des spectres de rayonnements gamma d'énergie moyenne 1,0 MeV et des spectres de neutrons d'énergie moyenne 2,1 MeV.

La géométrie utilisée dans ces simulations est une géométrie de CARMEN identique à celle présentée au chapitre 4 où seuls les tubes photomultiplicateurs ainsi que la structure de maintien des deux hémisphères ne sont pas représentés. Chaque hémisphère contient du pseudocumène dopé à 0,4% en masse dont la composition a déjà été présentée dans le tableau 4.1. L'enveloppe de chaque hémisphère est constituée de fer ( $\sim 92\%$   $^{56}\text{Fe}$ ) d'épaisseur 0,5 cm. Enfin, l'extérieur des hémisphères contient de l'air composé en première approximation de 21% d'oxygène et 79% d'azote. Cette géométrie est représentée sur les figures 6.1 en vue de dessus avec un écartement entre les hémisphères de 2 cm et en vue de face.

Lors d'une simulation, chaque particule est suivie dès l'instant de sa création jusqu'à ce qu'elle soit capturée par un noyau ou qu'elle s'échappe de l'environnement. La scintillation n'est pas modélisée dans la simulation. Toutes les interactions subies par la particule sont répertoriées dans un fichier de données, nommé PTRAC dans MCNPX v2.6. Ce fichier contient toutes les informations utiles pour analyser l'histoire de chaque particule créée : le type d'interaction subie, son énergie après interaction, sa position, ses vecteurs directeurs, ainsi que le temps auquel a lieu cette interaction. Grâce à ces informations, nous allons pouvoir décrire les dépôts d'énergie des neutrons et des rayonnements gamma dans le pic prompt au cours du temps.

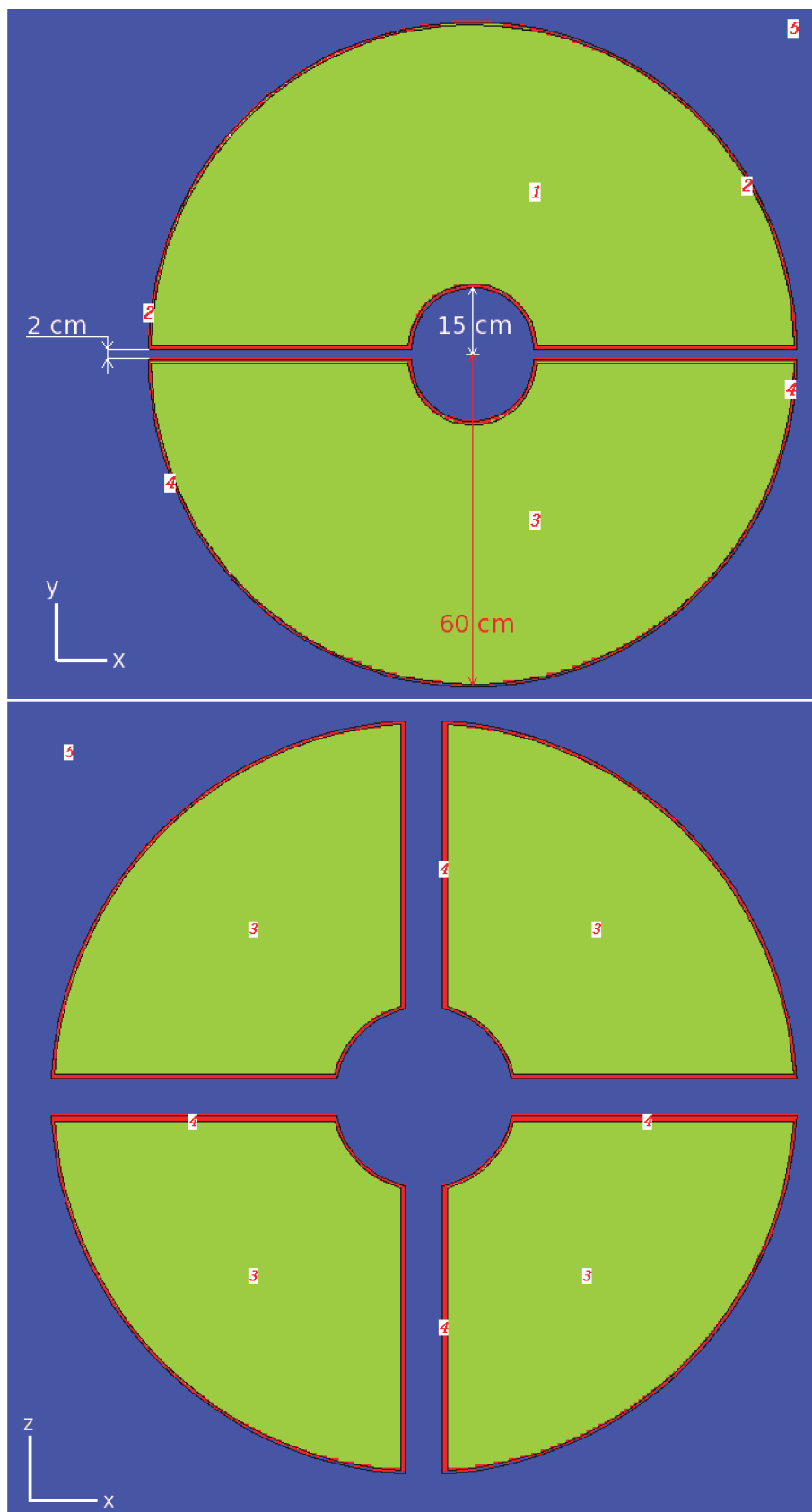


FIGURE 6.1 – Géométrie du détecteur CARMEN telle que modélisée dans MCNPX v2.6. Le scintillateur est en vert, l’enveloppe de fer est en rouge et l’air environnant est en bleu. La figure du haut représente les deux hémisphères espacées de 2 cm en vue de dessus. La figure du bas représente un hémisphère en vue de face.

### 6.1.2 Analyse des simulations

Pour commencer, nous pouvons représenter les distributions du nombre total de collisions par histoire neutron (en bleu) et gamma (en rouge) sur la figure 6.2. Les neutrons effectuent un plus grand nombre de collisions que les rayonnements gamma, en moyenne  $\sim 27$  contre 7.

Ils perdent leur énergie lors de collisions élastiques avec les noyaux d'hydrogène et de carbone du liquide scintillant. Pour des neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV, la distribution en énergie des protons de recul est uniforme avec un maximum à  $E_p = E_n$ . Ils peuvent donc déposer la totalité de leur énergie en une collision. Lors d'une diffusion sur un noyau de carbone, les neutrons peuvent perdre jusqu'à 28% de leur énergie en une collision.

Les neutrons vont donc déposer la majeure partie de leur énergie dès les premières collisions, comme on peut le voir sur la figure 6.3 représentant l'évolution de la part d'énergie déposée par le neutron au cours des  $k$  collisions qu'il effectue, avec en moyenne 40% de leur énergie initiale déposée lors de la première diffusion dans le liquide scintillant.

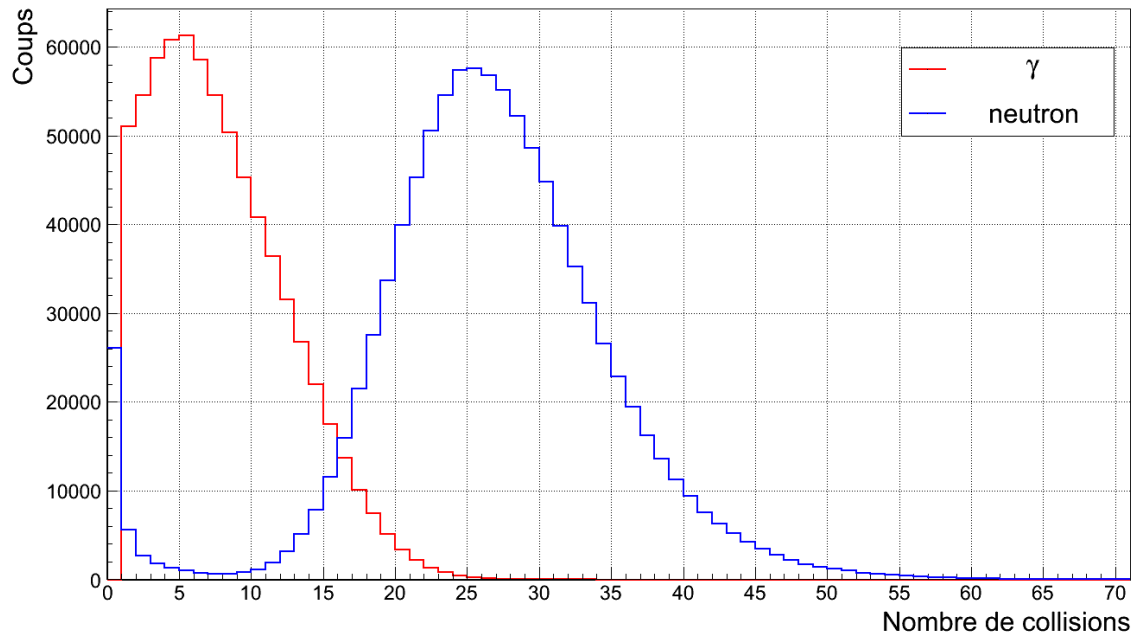


FIGURE 6.2 – Distribution du nombre total de collisions par histoire neutron et par histoire gamma.

Les neutrons et les rayonnements gamma sont séparés par temps de vol et la majeure partie de l'énergie des neutrons est déposée lors des premières collisions ; il est donc important de comparer le dépôt d'énergie des neutrons et des rayonnements gamma en fonction du temps. La figure 6.4 représente la distribution de la durée totale d'une histoire gamma en rouge et d'une histoire neutron en bleu. Dans le cas des rayonnements gammas, les interactions avec le scintillateur ont lieu entre 0 et 7 ns. La distribution est très piquée avec un maximum à 2 ns et un temps moyen entre chaque collision de l'ordre de 0,3 ns. Dans le cas des neutrons, la distribution



démarre à  $\sim 4$  ns et est maximale entre 8 ns et 13 ns.

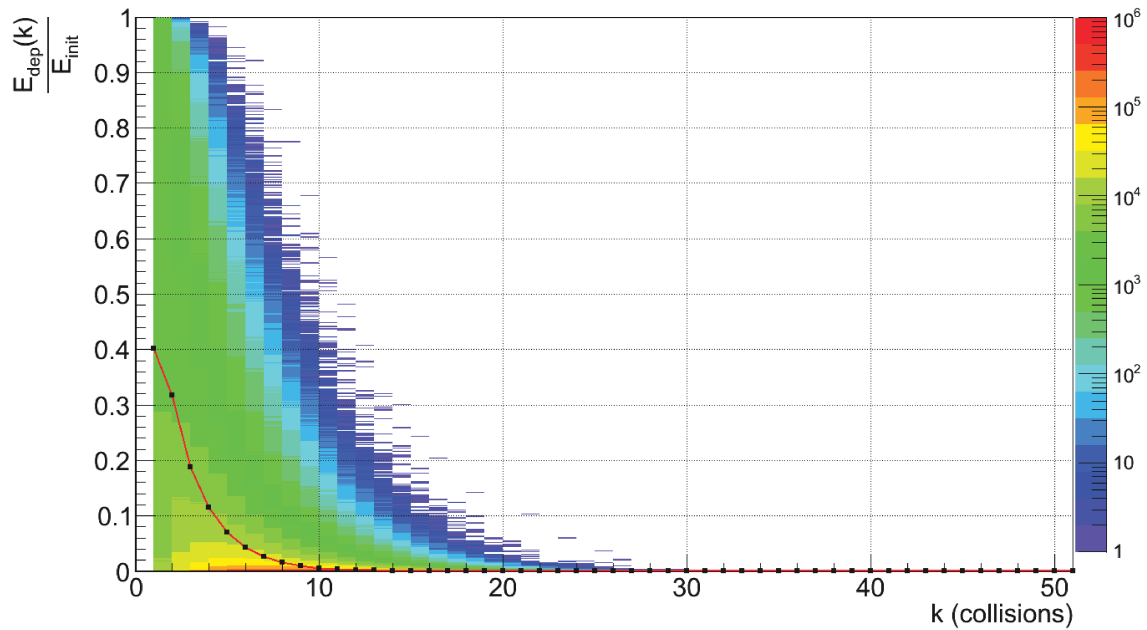


FIGURE 6.3 – Evolution de la proportion d'énergie déposée par le neutron au cours de ses  $k$  collisions. La proportion moyenne est représentée par les points.

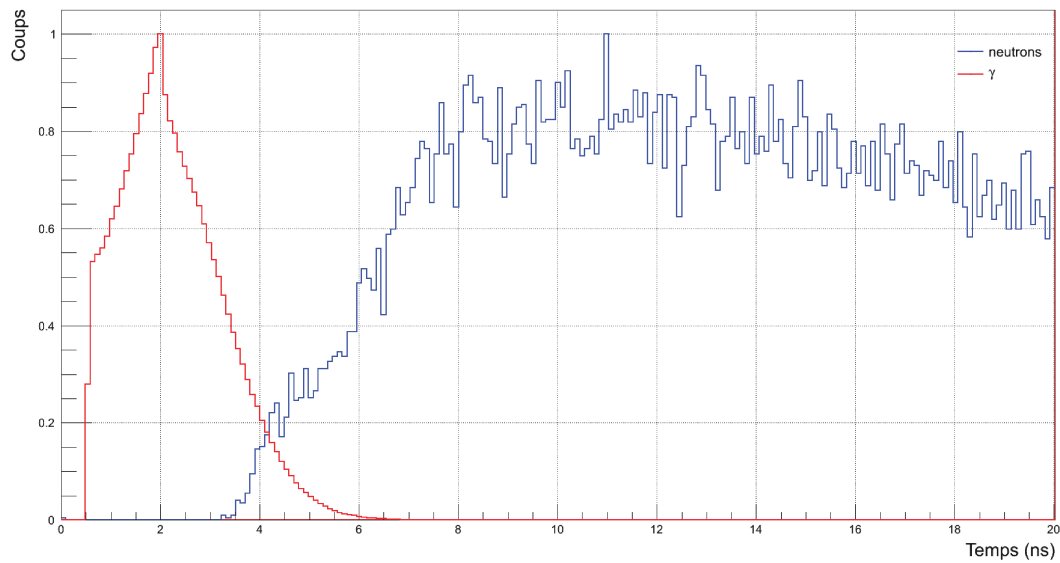


FIGURE 6.4 – Comparaison entre les durées totales d'une histoire neutron et d'une histoire gamma.

On observe donc un recouvrement faible des dépôts d'énergie des neutrons et des rayonnements gamma. Afin de le calculer, nous devons maintenant utiliser des signaux de fluorescence moyens permettant de décrire complètement les signaux associés à ces histoires neutron et gamma. Ces signaux moyens sont représentés sur la figure 6.5. Le signal moyen associé à un rayonnement gamma  $s_\gamma$  est en rouge et celui associé à un neutron  $s_n$  est en bleu. Ils proviennent de mesures indépendantes,

effectuées sur une cellule cylindrique de BC521 couplée à un tube photomultiplicateur Photonis XP4512B identique à ceux présents sur CARMEN, et ont un temps de montée de l'ordre de 10 ns avec une décroissance du signal s'étalant jusqu'à environ 200 ns.

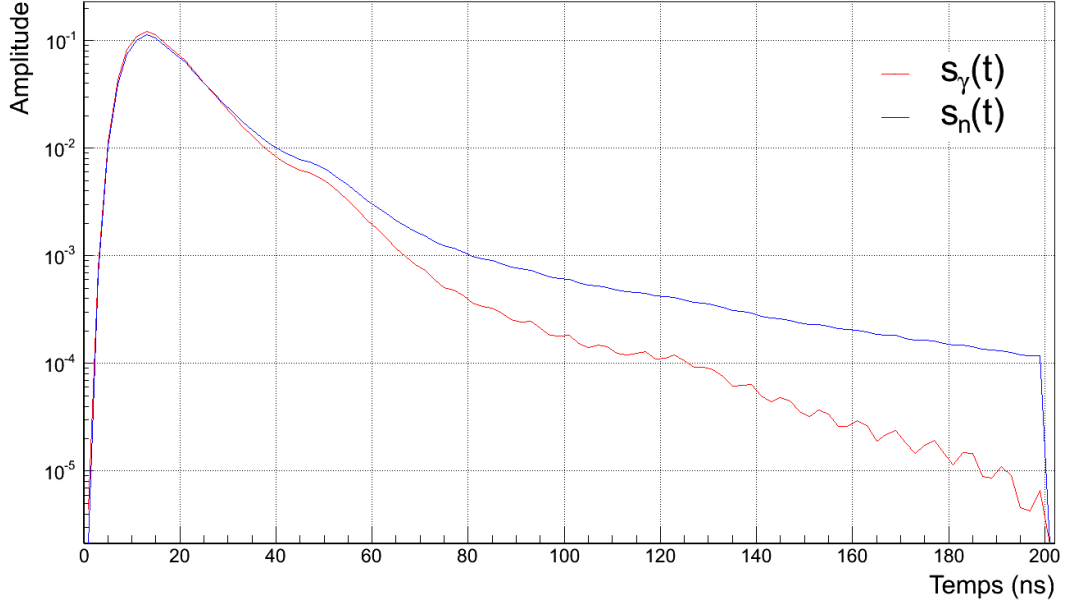


FIGURE 6.5 – Signaux moyens de fluorescence d'une cellule 2" de BC521 couplée à un tube photomultiplicateur XP4512B dus à un neutron (en bleu) et à un rayonnement gamma (en rouge).

Dans le cas des rayonnements gamma, les dépôts d'énergie gamma sont centrés sur 2 ns. De plus, le temps moyen entre chaque dépôt est très faible : 0,2 ns en moyenne. On peut le négliger par rapport au temps de montée du signal et considérer que l'intégralité des dépôts se fait au temps  $t_0 = 2$  ns. Nous utiliserons ensuite un seul signal moyen pondéré de l'énergie moyenne déposée par les rayonnements gamma. Dans le cas des neutrons, nous devons considérer chaque collision et leur associer un signal moyen pondéré de l'énergie déposée lors de la collision et décalé du temps auquel a lieu la collision. Nous pourrions ensuite sommer ces signaux et calculer leur contribution au pic prompt.

L'énergie étant mesurée par intégration du pic prompt, nous devons calculer ces contributions en fonction de la porte d'intégration temporelle  $\tau$  choisie pour pouvoir ensuite optimiser la mesure. A cet effet, nous nous servons de l'intégrale  $I_{\gamma,n}$  de ces signaux moyens  $s_{\gamma,n}(t)$  neutron et gamma en fonction de la porte d'intégration  $\tau \in [0; 200]$  :

$$I_{\gamma,n}(\tau) = \int_0^{\tau} s_{\gamma,n}(t) \cdot dt \quad (6.1)$$

L'intégrale totale  $I_{\gamma,n}(200)$  donne directement une mesure de l'énergie déposée dans le scintillateur. Nous pouvons alors directement calculer la proportion de signal moyen intégré  $P_{\gamma,n}$  en fonction de  $\tau$  :

$$P_{\gamma,n}(\tau) = \frac{I_{\gamma,n}(\tau)}{I_{\gamma,n}(200)} \quad (6.2)$$

Pour une collision à un temps  $t_{coll}$ , la proportion de signal moyen intégré au sein de la porte d'intégration  $\tau$  vaut alors  $P_{\gamma,n}(\tau - t_{coll})$ .

### 6.1.2.1 Cas des rayonnements gamma

Les dépôts d'énergie des rayonnements gamma étant considérés comme ponctuels, la proportion de signal moyen gamma que nous intégrons dans le pic prompt vaut  $P_{\gamma}(\tau - 2)$ . Il suffit ensuite de la pondérer par la part d'énergie moyenne déposée par un rayonnement gamma pour connaître leur contribution  $[\gamma](\tau)$  au pic prompt en fonction de sa porte d'intégration :

$$[\gamma](\tau) = \left\langle \frac{E_{\gamma}^{dep}}{E_{\gamma}^0} \right\rangle_1 \cdot P_{\gamma}(\tau - 2)$$

Cependant, lors des simulations, les rayonnements gamma ont été simulés indépendamment, et nous devons tenir compte de la multiplicité  $M_{\gamma} = 8$  dans ce problème. De plus, les rayonnements gamma ne déposent pas forcément la totalité de leur énergie dans le scintillateur comme le montre la figure 6.6 représentant la proportion d'énergie déposée par un gamma.. Par exemple, le fer de l'enveloppe de CARMEN peut absorber une partie des rayonnements gamma de basse énergie, typiquement autour de la centaine de kilo-électronvolts. Nous devons également en tenir compte dans les calculs.

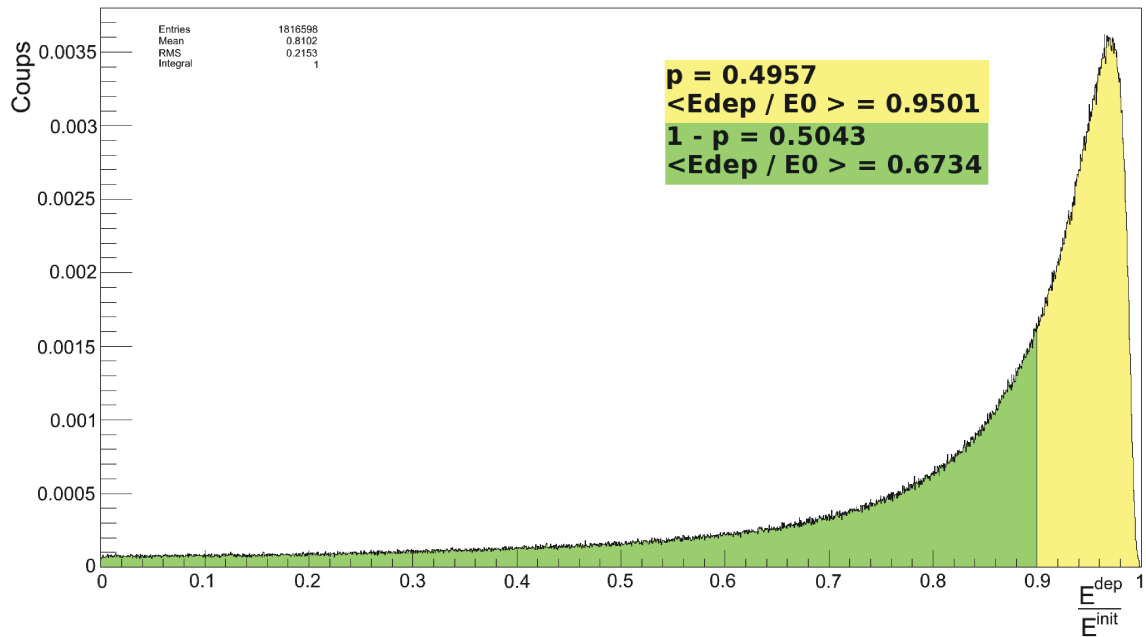


FIGURE 6.6 – Proportion d'énergie déposée par les rayonnement gamma dans CARMEN.

On remarque que le dépôt d'énergie est piqué à 0,97%, et présente de nombreux dépôts partiels. Pour simplifier le problème, nous considérons ensuite qu'un gamma entrant dans CARMEN suit la distribution suivante : il a soit une probabilité de 49,57% de déposer 95,01% de son énergie initiale, soit une probabilité de 50,43% de déposer 67,34% de son énergie initiale. Cette simplification nous permet alors

de calculer une proportion moyenne d'énergie déposée par une cascade de  $M_\gamma = 8$  photons selon la relation suivante :

$$\left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle = \frac{1}{M_\gamma} \cdot \sum_{k=0}^{M_\gamma} \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_k \cdot \binom{M_\gamma}{k} \cdot p^k \cdot (1-p)^{M_\gamma-k} \quad (6.3)$$

où :

$$\begin{cases} \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_k = k \cdot \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_p + (M_\gamma - k) \cdot \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_{1-p} \\ \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_p = 0,9501 \\ \left\langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^0} \right\rangle_{1-p} = 0,6734 \\ p = 0,4957 \\ M_\gamma = 8 \end{cases}$$

Pour une multiplicité moyenne de 8 rayonnements gamma, la proportion moyenne d'énergie déposée dans CARMEN par rapport à leur énergie initiale vaut 81,06% ; ce qui donne une contribution au pic prompt en fonction de sa porte d'intégration de :

$$[\gamma](\tau) = 0,8106 \cdot P_\gamma(\tau - 2) \quad (6.4)$$

#### 6.1.2.2 Cas des neutrons

Contrairement aux rayonnements gamma, nous avons vu que la totalité des dépôts d'énergie des neutrons ne peut pas être considérée comme un dépôt ponctuel à un instant donné et nous devons prendre en compte chaque collision caractérisée par son énergie déposée  $E_n^{coll}$  et son temps de collision  $t_{coll}$ . De la même manière que pour les rayonnements gamma, nous calculons la proportion d'énergie déposée en fonction de la porte d'intégration pour chaque collision  $i$  :

$$P_n(\tau - t_i) \cdot \frac{E_n^i}{E_n^0}$$

Pour  $N_h$  histoires neutrons composées de  $N_{coll}^k$  collisions, la proportion moyenne d'énergie neutron mesurée en fonction de la porte d'intégration du pic prompt peut s'écrire comme ci-dessous :

$$[n](\tau) = \frac{1}{N_h} \cdot \sum_{j=1}^{N_h} \left( \sum_{i=1}^{N_{coll}^j} P_n(\tau - t_i) \cdot \frac{E_n^i}{E_n^0} \right) \quad (6.5)$$

Afin de rendre compte de la différence de rendement en lumière de fluorescence due aux neutrons par rapport aux rayonnements gamma dans le BC521, l'énergie déposée par le neutron est directement traduite en méga-électronvolt équivalent électron grâce à la relation présentée au paragraphe 5.4.1.

#### 6.1.2.3 Calcul des contributions neutron et gamma

Finalement, pour toutes les fissions simulées, nous calculons le rapport entre la part d'énergie neutron déposée et la part d'énergie gamma déposée en fonction de

la porte d'intégration du pic prompt. Nous introduisons les efficacités de détection des neutrons  $\varepsilon_n$  et des rayonnements gamma  $\varepsilon_\gamma$ , ainsi que les multiplicités moyennes neutron  $\bar{\nu}$  et gamma  $\bar{M}_\gamma$  afin de calculer ce rapport pour une fission en moyenne :

$$\begin{aligned} \left[ \frac{n}{\gamma} \right](\tau) &= \frac{\varepsilon_n \cdot \bar{\nu} \cdot [n](\tau)}{\varepsilon_\gamma \cdot \bar{M}_\gamma \cdot [\gamma](\tau)} \\ &= \frac{\varepsilon_n \cdot \bar{\nu}}{\varepsilon_\gamma \cdot \bar{M}_\gamma} \cdot \left\langle \frac{E_\gamma^0}{E_\gamma^{dep}} \right\rangle \cdot \frac{1}{P_\gamma(\tau - 2)} \cdot \frac{1}{N_h} \cdot \sum_{j=1}^{N_h} \left( \sum_{i=1}^{N_{coll}^j} P_n(\tau - t_i) \cdot \frac{E_n^i}{E_n^0} \right) \end{aligned}$$

avec :  $\bar{\nu} = 3,76$ [19],  $\bar{M}_\gamma = 7,8$ [94],  $\varepsilon_n = 92,69\%$  et  $\varepsilon_\gamma = 78,19\%$ .

## 6.2 Résultats : contribution des rayonnements gamma et des neutrons à la mesure de l'énergie totale neutron

La figure 6.7 présente le résultat de ces simulations pour des rayonnements gamma et des neutrons de fission. La courbe rouge représente donc le rapport  $[n/\gamma](\tau)$  de la part d'énergie déposée par les neutrons sur la part d'énergie déposée par les rayonnements gamma lors d'une fission en fonction de la porte d'intégration du pic prompt. La courbe bleue représente la proportion de signal gamma intégré  $P_\gamma(\tau)$  en fonction de cette porte d'intégration.

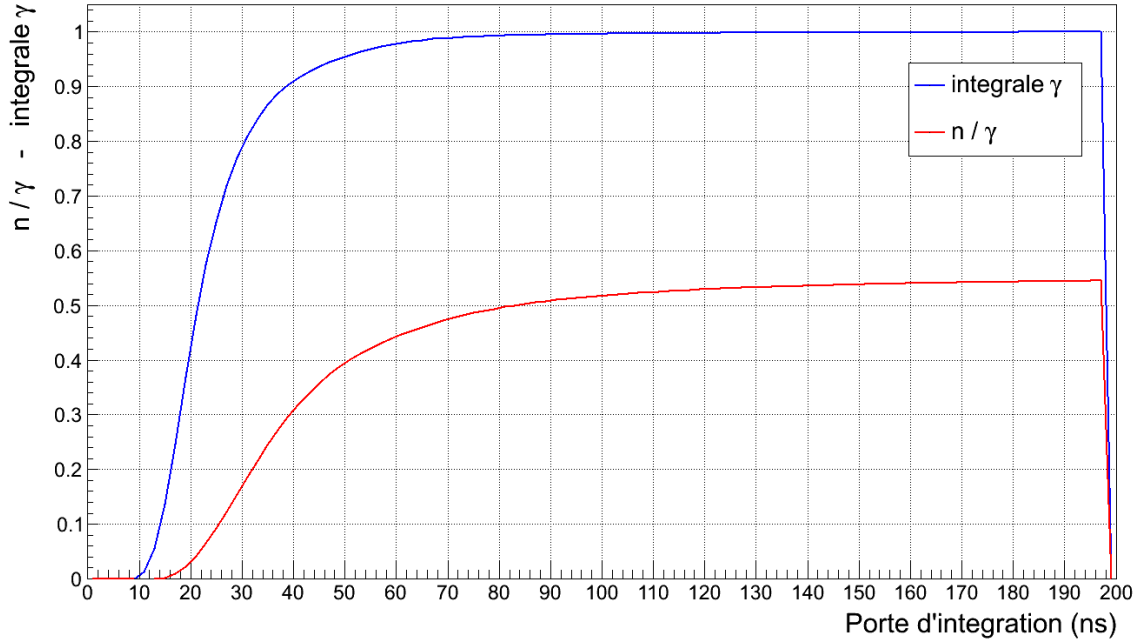


FIGURE 6.7 – Comparaison entre la contribution neutron et la proportion de signal gamma mesurée en fonction de la porte d'intégration du pic prompt, pour des rayonnements gamma et des neutrons de fission du  $^{252}\text{Cf}$ .

La contribution des neutrons est loin d'être négligeable et apparaît dès que l'on intègre le pic prompt sur une quinzaine de nanosecondes. Elle croît ensuite rapide-

ment pour tendre vers une valeur asymptotique de 55%. Un compromis est nécessaire pour mesurer correctement l'énergie totale gamma rayonnée. D'un côté, nous devons intégrer le pic prompt suffisamment longtemps pour intégrer le plus de signal provenant des rayonnements gamma afin de ne pas dégrader la résolution en énergie. Elle est proche de sa valeur asymptotique dès lors que l'on intègre au moins 90% du signal gamma. De l'autre, il faut minimiser la quantité d'énergie totale neutron intégrée pour limiter la correction appliquée à la mesure de l'énergie gamma. Par conséquent, il semble raisonnable d'intégrer le pic prompt sur une durée de 40 ns : 90% du signal gamma est intégré et le rapport de la part d'énergie déposée par les neutrons sur la part d'énergie déposée par les rayonnements gamma est de l'ordre de 30%.

Le reste du signal contient par ailleurs l'information relative à l'énergie déposée par les neutrons ainsi qu'une faible contribution des rayonnements gamma. En intégrant la suite du signal à partir de 40 ns, nous pouvons calculer le rapport de la part d'énergie déposée par les rayonnements gamma sur la part d'énergie déposée par les neutrons. Elle vaut 14%. La proportion de signal neutron intégré dans ce cas vaut 85%.

Ces simulations montrent donc qu'il est possible de mesurer l'énergie totale déposée dans CARMEN en intégrant le pic prompt sur deux portes distinctes. On mesure  $E_1$  sur l'intervalle  $[0; 40]$  ns et  $E_2$  sur l'intervalle  $[40; 200]$  ns et ces énergies peuvent s'exprimer en fonction de l'énergie totale gamma et de l'énergie totale neutron sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} E_1 &= a_1 E_\gamma + b_1 \widetilde{E}_n \\ E_2 &= a_2 E_\gamma + b_2 \widetilde{E}_n \end{aligned} \quad (6.6)$$

où  $a_i$ ,  $b_i$  sont des coefficients positifs que nous allons déterminer,  $E_\gamma$  est l'énergie totale gamma rayonnée et  $\widetilde{E}_n$  est l'énergie totale neutron exprimée en mégaelectronvolts équivalent électron.

L'analyse des simulations a montré que lors de la mesure de  $E_1$ , nous intégrons 91% du signal gamma et que la contribution des neutrons à cette mesure vaut 30%. De plus, les rayonnements gamma déposent en moyenne 81,06% de leur énergie initiale. Lors de la mesure de  $E_2$ , nous intégrons 85% des signaux neutron et la contribution des rayonnements gamma à cette mesure vaut 14%. Nous savons également que les neutrons détectés déposent la totalité de leur énergie dans le scintillateur. Nous pouvons donc écrire les conditions suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_1 = 0,8106 \times 0,91 = 0,7376 \\ \frac{b_1 \widetilde{E}_n}{a_1 E_\gamma} = 0,3 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} b_2 = 0,85 \\ \frac{a_2 E_\gamma}{b_2 \widetilde{E}_n} = 0,14 \end{array} \right.$$

On peut ensuite déduire de ces conditions les relations suivantes entre l'énergie mesurée dans le pic prompt et les énergies totales neutron et gamma rayonnées :

$$\boxed{\begin{aligned} E_\gamma &= \frac{E_1}{0,9589} \\ \widetilde{E}_n &= \frac{E_2}{0,969} \end{aligned}} \quad (6.7)$$

## 6.3 Remarques sur les mesures de J. Fréhaut et H. Nifenecker

Comme nous l'avons présenté dans l'introduction de cette partie, deux mesures d'énergie totale on déjà été effectuées avec des détecteurs de type boule à neutrons dans les années 1970.

Les premières mesures réalisées par J. Fréhaut [36] portaient sur la fission induite par neutrons rapides pour différents noyaux :  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{237}\text{Np}$ . Le détecteur était une boule de pseudocumène dopé au gadolinium de 76 cm de diamètre, traversée en son centre par un cylindre de 7 cm de diamètre. J. Fréhaut a mesuré les énergies totales gamma rayonnées en fonction de la multiplicité neutronique pour ces différents noyaux. L'énergie mesurée n'est pas absolue mais relative à l'énergie totale gamma rayonnée dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  d'après les valeurs de F. Pleasonton[78] et corrigée d'une contribution neutron. Suite à une discussion avec J. Fréhaut, il s'avère que la correction apportée à l'énergie mesurée est basée sur les mesures de H. Nifenecker et al., soit 0,3 MeV par neutron détecté, et en considérant que les efficacités de détection neutron et gamma sont identiques. Pour la fission de  $^{235}\text{U}$  induite par des neutrons de 2,37 MeV, il trouve une énergie totale gamma rayonnée de  $E_\gamma = 6,77$  MeV et une multiplicité neutronique de  $\nu = 2,5$ . La correction apportée à l'énergie mesurée pour soustraire la composante neutron est donc de l'ordre de 4%.

Les secondes mesures qui nous intéressent sont celles de H. Nifenecker et al.[71]. Ces mesures ont été réalisées grâce à une boule à neutrons similaire, de diamètre externe 100 cm, traversée en son centre par un cylindre (son diamètre n'est pas précisé). La boule est remplie d'un liquide scintillant dopé au gadolinium. Ils mesurent l'énergie cinétique des fragments de fission grâce à des détecteurs silicium en coïncidence avec la multiplicité de neutrons et l'énergie totale gamma rayonnée grâce à leur boule à neutrons. Afin de corriger la mesure de la composante neutron, ils effectuent deux mesures avec une même source de  $^{252}\text{Cf(sf)}$  entourée soit de graphite, soit de polyéthylène, altérant uniquement la composante neutron. Ils en déduisent ainsi une correction de 0,3 MeV par neutron, et mesurent une énergie totale gamma après correction de  $E_\gamma = 6,5$  MeV. Cette correction est donc de l'ordre de 15% sur l'énergie mesurée.

Afin de comparer ces corrections à nos simulations, nous devons calculer le rapport  $[n/\gamma]$  à partir de ces données :

$$\left[ \frac{n}{\gamma} \right] = \frac{\varepsilon_n \cdot \bar{\nu} \cdot \langle \frac{E_n^{dep}}{E_n^{init}} \rangle}{\varepsilon_\gamma \cdot \bar{M}_\gamma \cdot \langle \frac{E_\gamma^{dep}}{E_\gamma^{init}} \rangle} \quad (6.8)$$

Les deux mesures appliquent une correction de 0,3 MeV par neutron détecté. L'énergie moyenne d'un neutron de fission pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  étant de 2 MeV, on peut en déduire :

$$\varepsilon_n \cdot \langle \frac{E_n^{dep}}{E_n^{init}} \rangle = \frac{\varepsilon_n \cdot \langle E_n^{dep} \rangle}{\langle E_n^{init} \rangle} = \frac{0,3}{2} = 0,15 \quad (6.9)$$

Par ailleurs, ces deux mesures intègrent la totalité de l'énergie déposée par les rayonnements gamma, soit :

$$\left\langle \frac{E_{\gamma}^{dep}}{E_{\gamma}^{init}} \right\rangle = 1,0 \quad (6.10)$$

Afin de comparer ces corrections à nos simulations, nous pouvons en déduire que le rapport  $[n/\gamma]$  à partir de ces données vaut :

$$\left[ \frac{n}{\gamma} \right] = \frac{\bar{\nu} \cdot 0,15}{M_{\gamma} \cdot \varepsilon_{\gamma} \cdot 1,0} = \frac{3,78 \cdot 0,15}{8 \cdot 0,9 \cdot 1,0} = 7,9\% \quad (6.11)$$

La correction apportée par J. Fréhaut et H. Nifenecker à leurs mesures correspond à une contribution neutron de 7,9%, bien plus faible que celle que nous avons déterminé par la simulation. Dans ces deux mesures, nous ne disposons d'aucune information explicite concernant la durée d'intégration du pic prompt ; néanmoins il semblerait qu'elle soit de l'ordre de 150 ns. Compte tenu de la géométrie de la boule de J. Fréhaut, nous savons que la base de vol des neutrons à l'intérieur de la boule est de 3,5 cm (contre 15 cm pour CARMEN). Les dépôts d'énergie des neutrons auront donc lieu dans un temps plus court après le dépôt d'énergie des rayonnements gamma et la composante neutron sera plus importante dans l'intégration du pic prompt. D'après l'étude que nous avons réalisée pour CARMEN, une telle durée d'intégration implique une composante neutron bien plus élevée que celle qui a été estimée. Nous nous attendrions à un rapport  $[n/\gamma]$  de l'ordre de 55% pour CARMEN. De plus, la mesure de la composante neutron amène H. Nifenecker et al. à en déduire un facteur de conversion entre la réponse du scintillateurs aux électrons et aux neutrons. Ils trouvent un facteur 7, qui n'est pas en accord avec nos mesures ainsi que les valeurs tirées de la littérature et compilées sur la figure 5.10. La mesure absolue d'énergie totale rayonnée dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  de  $E_{\gamma} = 6,5 \text{ MeV}$  par H. Nifenecker, déjà inférieure aux valeurs présentes dans la littérature et recensées dans le tableau 6.1, pourrait être sous-estimée.

$\bar{E}_{\gamma,\text{tot}}$ (MeV)	Référence
$6,64 \pm 0,08$	R. Billnert et al.[11]
$6,65 \pm 0,12$	R. Billnert et al.[11]
$6,7 \pm 0,4$	E. Nardi et al.[69]
$6,84$	V. V. Verbinski et al.[94]
$7,06 \pm 0,35$	F. Pleasonton et al.[78]
$8,2$	A. B. Smith et al.[87]
$8,52$	A. Chyzh et al.[20]

TABLE 6.1 – Energie totale gamma moyenne rayonnée dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ , mesures provenant de la littérature.

Pour conclure sur ces mesures, nonobstant le manque d'informations détaillées sur les conditions et le dispositif expérimental, il y a une différence significative entre nos estimations et les corrections apportées lors de ces mesures. De plus, l'écart observé sur les mesures de l'énergie totale gamma rayonnée rapportées dans la littérature peut aller jusqu'à 20%. Il y a donc un réel besoin d'effectuer de telles



mesures et l'utilisation d'une boule à neutrons nécessite une caractérisation précise de la contribution que peuvent apporter les neutrons prompts. À terme, des mesures expérimentales en fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  devraient confirmer notre étude.

## 6.4 Perspectives d'optimisation de la calorimétrie gamma et neutron avec CARMEN

Comme nous venons de le montrer, le détecteur CARMEN n'est pas optimisé pour effectuer des mesures précises de calorimétrie de la fission du fait de la forte contribution des neutrons au pic prompt. Nous pouvons envisager des améliorations afin de mieux séparer la détection des rayonnements gamma de la thermalisation des neutrons. La solution la plus simple à ce problème est d'augmenter la distance entre la source et le liquide scintillant.

Sans modifier CARMEN, nous sommes limités à l'augmentation de l'espacement entre les deux hémisphères. Un premier facteur en défaveur de cette méthode apparaît clairement : l'angle solide de détection diminue et les efficacités de détection chutent. La figure 6.8 représente les efficacités de détection des neutrons en vert et des rayonnements gamma en rouge, ainsi que la contribution des neutrons au pic prompt en bleu calculée sur 40 ns en fonction de la distance entre les deux hémisphères. Bien que la contribution neutron diminue de manière satisfaisante, avec par exemple 13% pour un espacement de 60 cm, les efficacités de détection sont trop faibles, aux alentours de 35% pour les neutrons et 43% pour les rayonnements gammas et nous perdons alors tout l'intérêt de CARMEN qui est de pouvoir compter les neutrons avec une grande efficacité. On ne peut donc pas envisager d'écarter les hémisphères pour améliorer la mesure des énergies totales au détriment du comptage de neutrons.

### Avec une nouvelle géométrie

Afin de conserver la grande efficacité de détection des neutrons et des rayonnements gamma, nous devons envisager une nouvelle géométrie de CARMEN avec une chambre à réaction plus grande permettant une meilleure séparation des neutrons et des rayonnements gamma par temps de vol. Des simulations similaires à celles présentées précédemment ont été réalisées en faisant varier les rayons interne et externe de CARMEN afin de déterminer de nouvelles proportions permettant de réduire la contribution des neutrons tout en conservant une efficacité de détection des neutrons et des rayonnements gamma supérieure ou égale à 90%. Ces géométries sont représentées en vue de dessus sur la figure 6.9. Nous avons fait varier le rayon externe entre 75 cm et 90 cm avec un pas de 5 cm, et cela pour des rayons internes de 50 cm ou 60 cm.

La figure 6.10 représente le résultat de ces simulations. On retrouve sur ce graphe l'efficacité de capture de neutron et l'efficacité totale gamma pour les différentes valeurs de rayons internes et externes, ainsi que la proportion d'énergie neutron intégrée sur 40 ns par rapport à l'énergie gamma intégrée.

Lorsque l'on fonctionne à volume constant, ce qui correspond à un rayon externe (RE) de 70 cm et 75 cm pour des rayons internes (RI) respectivement de 50 et 60 cm, on observe une diminution des efficacités de détection. Un rayon interne de 50 cm

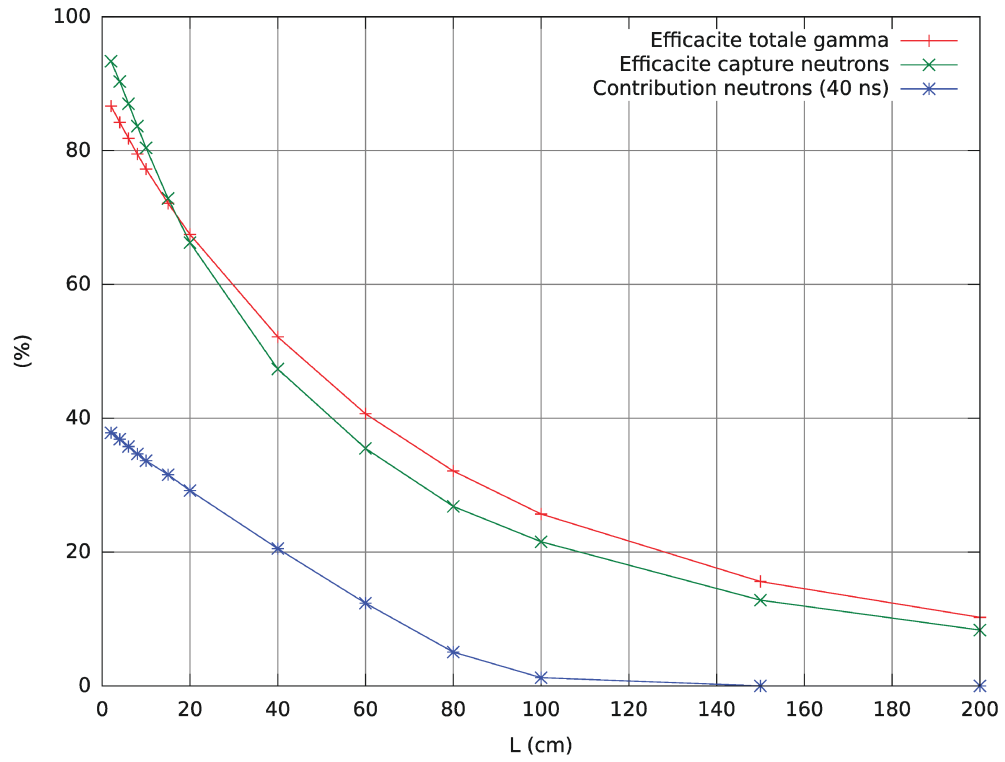


FIGURE 6.8 – Evolution des efficacités totale gamma (en rouge) et de capture des neutrons (en vert) en fonction de l’espacement des hémisphères. La proportion d’énergie neutron par rapport à l’énergie gamma mesurée sur une porte d’intégration de 40 ns est également représentée en bleu.

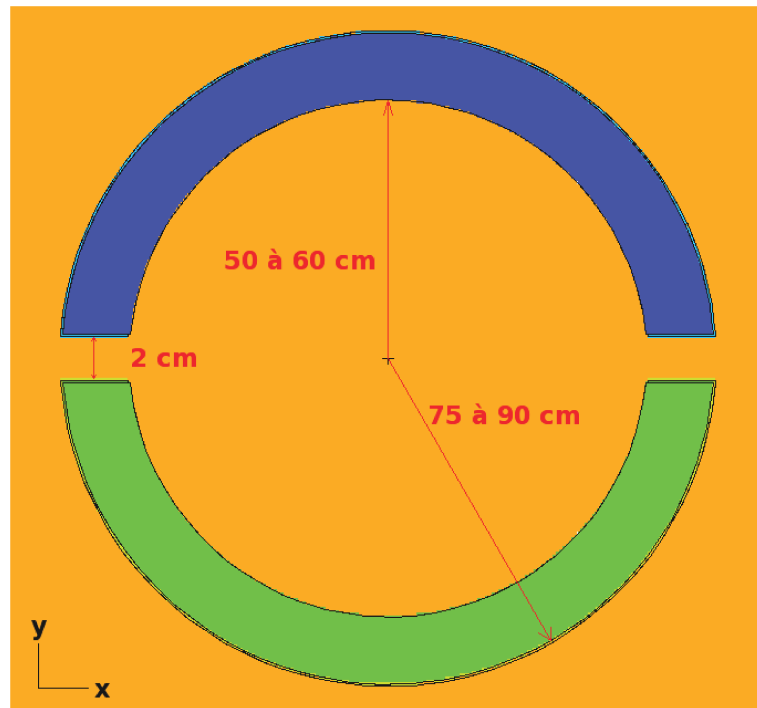


FIGURE 6.9 – Vue de dessus de CARMEN avec une chambre à réaction adaptée à la calorimétrie gamma et neutron.

et externe de 70 cm donne une efficacité totale gamma de  $\varepsilon_\gamma \simeq 77\%$  et une efficacité de capture de neutrons de  $\varepsilon_n \simeq 88\%$ . Le rapport  $[n/\gamma](\tau = 40 \text{ ns})$  vaut alors 15,2%. Un rayon interne de 60 cm et externe de 75 cm donne une efficacité totale gamma de  $\varepsilon_\gamma \simeq 66\%$  et une efficacité de capture de neutrons de  $\varepsilon_n \simeq 77\%$ . Le rapport  $[n/\gamma](\tau = 40 \text{ ns})$  vaut alors 3,47%. Bien que la contribution ait diminué, nous avons souhaité conserver le volume initial de pseudocumène présent dans la version actuelle de CARMEN. Par conséquent, l'épaisseur de liquide a fortement diminué ainsi que les efficacités de détection neutron et gamma. Afin de compenser cette diminution, nous devons augmenter le rayon externe de CARMEN. Par exemple avec un rayon externe de 90 cm, les efficacités de détections sont élevées :

- $\varepsilon_n \simeq 98\%$  et  $\varepsilon_\gamma \simeq 99\%$  avec un rayon interne de 50 cm
- $\varepsilon_n \simeq 97\%$  et  $\varepsilon_\gamma \simeq 91\%$  avec un rayon interne de 60 cm

Le rapport  $[n/\gamma](\tau = 40 \text{ ns})$  est également plus faible dans ces cas de figure avec 11,3% et 2,68% pour 50 cm et 60 cm de rayon interne respectivement.

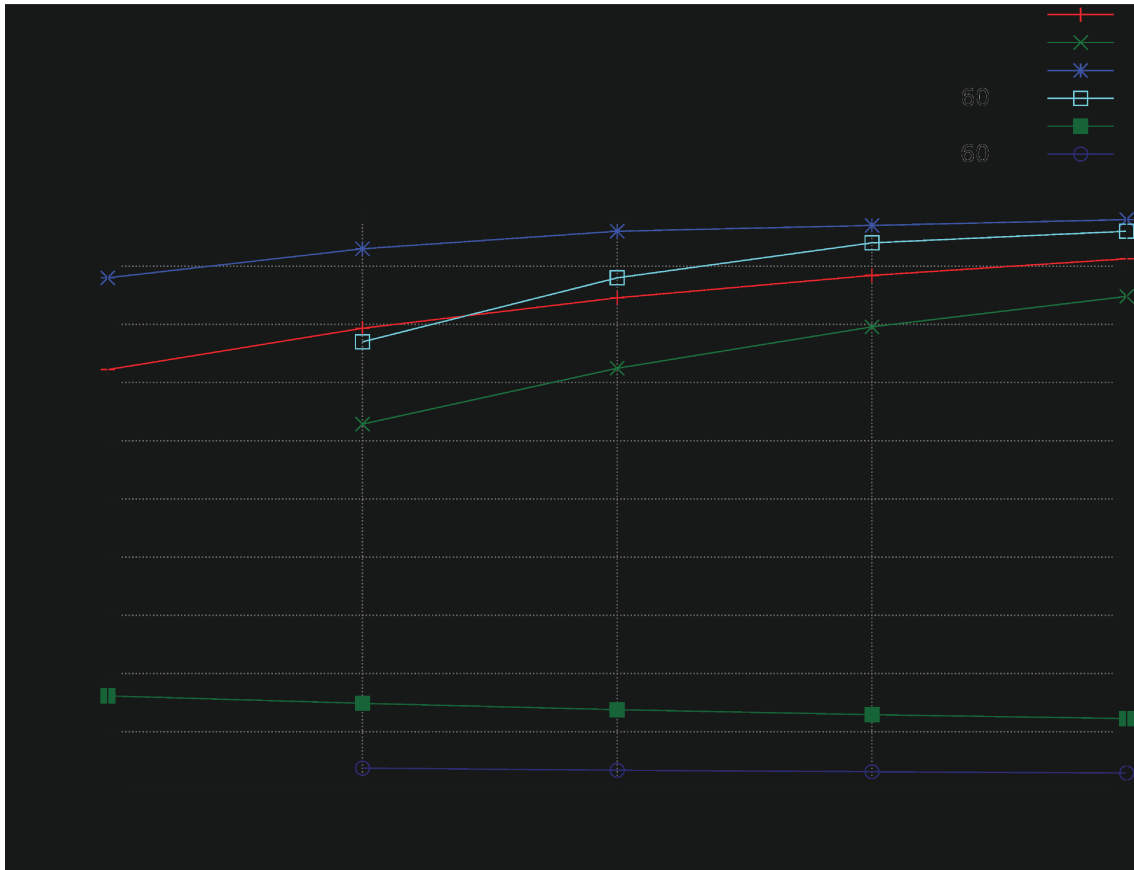


FIGURE 6.10 – Contributions neutrons sur une porte de 40 ns et efficacités de détection neutron et gamma pour des rayons internes de 50 cm et 60 cm, en fonction du rayon externe de CARMEN.

Si on envisage des modifications significatives de CARMEN dans le but d'améliorer ses possibilités de calorimétrie, l'idéal serait de concevoir un détecteur avec une chambre à réaction de rayon 60 cm, et avec un rayon externe au moins égal à 85 cm pour assurer des efficacités de détection similaires au détecteur actuel. Cela signifie également une augmentation significative du volume de scintillateur d'au moins un

facteur 2, ainsi que du nombre de tubes photomultiplicateurs pour conserver une efficacité de collection de lumière satisfaisante.

### **Avec des scintillateurs plastiques**

Une alternative serait d'envisager une version solide de CARMEN. Y. Kuroda et al. [51] ont développé un détecteur d'antineutrinos pour la surveillance des réacteurs fonctionnant sur le même principe que les boules à neutrons contenant un scintillateur liquide. Ils utilisent des scintillateurs plastiques classiques entourés de feuilles d'oxyde de gadolinium.

Cette nouvelle approche a plusieurs avantages non négligeables par rapport à CARMEN. Les plastiques sont beaucoup plus faciles à utiliser que le pseudocumène. Ils ne sont pas volatiles ni inflammables, ne nécessitent donc pas de conteneur étanche et de surveillance continue. La mobilité de CARMEN est également très limitée. On peut penser à une construction modulaire à base de plastiques permettant plus de souplesse pour ses utilisations futures. Enfin, on peut également s'affranchir de l'enveloppe en fer, réduisant ainsi l'absorption des rayonnements gamma de basse énergie (moins de 300  $keV$ ) et permettant une meilleure calorimétrie. Enfin, la possibilité de segmenter les plastiques, couplée à l'aluminisation des feuilles de gadolinium, pourraient permettre une meilleure efficacité de collection de la lumière émise par le scintillateur et donc une meilleure résolution en énergie.

## 6.5 Récapitulatif

Les mesures en corrélation de la multiplicité neutronique et de l'énergie totale rayonnée dans la fission avec CARMEN nécessitent une caractérisation précise de la réponse de son scintillateur liquide.

Notre travail sur la calibration en énergie gamma et neutron de chaque hémisphère a montré une forte dégradation du rendement en lumière du scintillateur présent dans CARMEN depuis les années 2000. Il présente une forte absorption à sa longueur d'onde d'émission, avec une longueur d'atténuation à 425 nm de 7 cm et 10 cm pour les hémisphères droit et gauche. La linéarité de sa réponse aux rayonnements gamma a été mesurée jusqu'à 4,4 MeV mais la résolution reste faible : respectivement 23,3% et 30,4% pour les hémisphères droit et gauche à 4,4 MeV. La calibration en énergie neutron de chaque hémisphère est également difficile. La méthode à privilégier est celle du temps de vol mais elle est considérablement polluée par des retours de neutrons provenant de l'environnement immédiat de chaque hémisphère (sol, casemate en béton et hémisphère complémentaire). Dans l'état actuel, seul un changement de liquide et la possibilité de dissocier les hémisphères de leur bâti permettrait d'obtenir une meilleure résolution en énergie gamma et une calibration en énergie neutron satisfaisante.

La seconde partie de ce travail portait sur l'optimisation de la mesure de l'énergie totale gamma rayonnée grâce au pic prompt de CARMEN. La faible séparation des neutrons et des rayonnements gamma par temps de vol induit une forte contribution des neutrons à l'énergie mesurée dans le pic prompt. L'étude du pic prompt par la simulation a permis d'optimiser cette mesure en choisissant un compromis sur la durée d'intégration du pic prompt. Une intégration sur 40 ns permet d'intégrer 91% du signal gamma tout en limitant la contribution des neutrons à hauteur de 30%. Ces résultats permettent également d'envisager la mesure de l'énergie totale neutron par intégration de la partie restante du signal prompt. Ces résultats nécessiteront une confirmation par l'expérience avec une source de  $^{252}\text{Cf}$ . Enfin, la configuration actuelle de CARMEN ne permet pas d'améliorer la séparation neutron-gamma. Elle ne pourra être réalisée que par un changement de géométrie de CARMEN, que ce soit avec un scintillateur liquide ou plastique.



# Conclusions et perspectives

Au cours de ce travail, le développement et la caractérisation d'un nouveau détecteur nommé "cible active scintillante" ont été réalisés. Ce détecteur tire profit des propriétés de la scintillation liquide organique telles que les capacités de PSD ou leur temps de réponse rapide et consiste à mettre des actinides en solution dans un liquide scintillant grâce à la technique de l'extraction liquide-liquide. Ce principe permet d'atteindre de très hautes efficacités de détection des alphas et des fragments de fission, et donc de mesurer avec précision la masse d'actinide en solution et le nombre de fissions avec un seul et même détecteur.

Lors de son développement, nous avons été confrontés à différents problèmes liés aux propriétés des scintillateurs et contraignant leur utilisation : la solubilité des actinides et la PSD des fragments de fission. Une étude exhaustive de cocktails scintillants a permis d'établir plusieurs conclusions. La réponse du scintillateur aux fragments étant encore mal comprise, il n'est pas possible d'anticiper la PSD des fragments de fission par analogie avec leur réponse aux particules chargées légères (protons, alphas). Cela signifie que des cocktails présentant une excellente PSD pour la discrimination neutron/gamma, comme le NE213 par exemple, ne possèdera pas forcément une bonne PSD pour les fragments de fission, i.e. une séparation protons de recul/fission. Ensuite, aucun cocktail scintillant étudié ne possède à la fois une limite de solubilité des actinides élevée et une bonne PSD avec séparation entre les protons de recul et les fragments de fission. Nous disposons donc de cocktails scintillants pouvant être utilisés dans des conditions différentes. Le premier cas est celui de l'Alphaex, qui permet d'atteindre des concentrations en actinides élevées, jusqu'à  $17 \text{ mg mL}^{-1}$  de  $^{232}\text{Th}$  et  $50 \text{ mg mL}^{-1}$  d'uranium naturel, mais ne présente pas de séparation proton/fragments de fission. Lors de mesures sous faisceau de neutrons, l'épaisseur de la cellule contenant de l'Alphaex devra être limitée à  $100 \mu\text{m}$  afin de s'affranchir du problème de recouvrement des événements de fission par les protons de recul. Le second cas est celui du DIN et de l'EJ-309, qui possèdent une bonne PSD avec séparation des fragments de fission et des protons de recul mais ont une solubilité des actinides plus faibles, jusqu'à  $1 \text{ mg mL}^{-1}$  de  $^{232}\text{Th}$  et  $3 \text{ mg mL}^{-1}$  d' $^{235}\text{U}$ . Face à ces faibles concentrations en actinides, une augmentation du volume de liquide ou du flux de neutrons pourrait être envisagée mais causerait la dégradation de ses performances. Nous devons donc nous limiter à une utilisation avec des neutrons thermiques.

Dans ces conditions, la cible active scintillante peut être utilisée comme trigger pour des mesures de sections efficaces de fission induites par neutrons. Elle est également parfaitement adaptée pour des mesures de taux de fission spontanée. Une mesure est d'ailleurs en cours sur la fission spontanée du  $^{240}\text{Pu}$  et du  $^{242}\text{Pu}$ , elle permettra de fournir des valeurs références pour la correction de l'efficacité de dé-

tection de chambres à fission utilisées pour mesurer la section efficace de fission de ces isotopes. Enfin, l'utilisation d'un scintillateur deutéré (EJ-315) ou fluoré ( $C_6F_6$  ou EJ-313) pourra également être envisagée pour détecter la fission induite par neutrons thermiques lors de mesures de spectrométrie gamma des fragments de fission afin de s'affranchir des rayonnements gamma émis par capture radiative des neutrons par l'hydrogène du scintillateur.

La seconde partie de ce travail de thèse a été consacrée à l'étude du détecteur CARMEN et de sa capacité à mesurer l'énergie libérée par émission de neutrons et de rayonnements gamma prompts dans la fission.

La remise en route et la calibration du détecteur ont permis de mettre en évidence une dégradation importante des performances du liquide scintillant. Une forte diminution de la longueur d'atténuation du liquide a été mesurée, ce qui implique une forte baisse de son rendement en lumière et de la résolution en énergie. Une différence importante de collection de lumière entre les hémisphères droit et gauche de CARMEN a également été mesurée et pourrait provenir d'une dégradation de la peinture réfléchissante ou des tubes photomultiplicateurs. Ce dernier point ne pourra être vérifié que par une inspection de chaque hémisphère lors du changement de tubes photomultiplicateurs prévu prochainement.

L'étude par la simulation du pic prompt de CARMEN a montré la possibilité de mesurer les énergies totales gamma et neutron grâce au choix d'une porte d'intégration du pic prompt adaptée. Dans la configuration actuelle de CARMEN, l'intégration du pic prompt pendant ses premières 40 ns permettra de mesurer l'énergie totale gamma tout en minimisant la contribution des neutrons, de l'ordre de 30%. Le seconde partie du signal prompt permettra ensuite de mesurer l'énergie totale neutron. Enfin, cette étude a montré également que les seules mesures d'énergie totales gamma réalisées avec une boule à neutrons (par J. Fréhaut [35] et par H. Nifenecker et al. [71]) sous-estiment nettement la contribution des neutrons au pic prompt et que les valeurs mesurées devraient être corrigées à la baisse.

Dans l'état actuel, la dégradation du liquide scintillant couplée à la faible séparation des neutrons et des rayonnements gamma dans le pic prompt ne nous permet pas de réaliser une mesure précise de l'énergie totale gamma et neutron avec CARMEN. Des améliorations sont nécessaires et plusieurs choix peuvent être envisagés. Une première solution consiste à changer uniquement le liquide scintillant lors du changement de tubes photomultiplicateurs, ce qui permettra d'améliorer nettement la résolution en énergie. Une deuxième solution consiste à changer la géométrie de CARMEN afin d'avoir une chambre à réaction plus grande et une meilleure séparation neutron/gamma dans le pic prompt. Cela signifie également d'avoir un volume de liquide scintillant plus important pour conserver de grandes efficacités de détection. Enfin, la troisième solution consiste à réaliser une version "solide" de CARMEN grâce à des blocs de plastiques scintillants entourés de feuilles de gadolinium et présente de nombreux avantages par rapport aux scintillateurs liquides en matière de sécurité ou de modularité par exemple.



# Bibliographie

- [1] *Photomultiplier Tubes, Basics and Applications (Third Edition)*, 2006.
- [2] M. AGENO ET AL., *Scintillation In Liquids and Solutions*, Physical Review, 89 (1950), p. 720.
- [3] A. AKSOY ET AL., *Response-function measurement of an NE213 scintillator using the  $^2\text{H}(d, n)^3\text{He}$  reaction*, Nuclear Instruments and Methods A, 337 (1994), pp. 486–491.
- [4] M. APOLLONIO ET AL., *Search for neutrino oscillations on a long baseline at the CHOOZ nuclear power station*, European Physical Journal C, 27 (2003), pp. 331–374.
- [5] C. F. BAES ET AL., *The Extraction of Uranium(VI) from Acid Perchlorate Solutions by Di-(2-ethylhexyl)-phosphoric Acid in n-Hexane*, The Journal of Physical Chemistry, 62 (1958).
- [6] K. BANERJEE ET AL., *Characteristics of Gd-loaded liquid scintillators BC521 and BC525*, Nuclear Instruments and Methods A, 580 (2007), pp. 1383–1389.
- [7] R. BATCHELOR ET AL., *The response of organic scintillators to fast neutrons*, Nuclear Instruments and Methods, 13 (1961), pp. 70–82.
- [8] G. BELIER ET AL., *Integral cross section measurement of the  $^{235}\text{U}(n, n')^{235m}\text{U}$  reaction in a pulsed reactor*, to be published, (2015).
- [9] G. BENTOUMI ET AL., *Characterization of a liquid scintillator based on linear alkyl benzene for neutron detection*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 701 (2013), pp. 221–224.
- [10] G. H. V. BERTRAND ET AL., *Pulse shape discrimination between (fast or thermal) neutrons and gamma rays with plastic scintillators : State of the art*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 776 (2015), pp. 115–128.
- [11] R. BILLNERT ET AL., *New prompt spectral gamma-ray data from the reaction  $^{252}\text{Cf}(sf)$  and its implication on present evaluated nuclear data files*, Physical Review C, 87 (2013), p. 024601.
- [12] J. B. BIRKS, *Scintillation Counters*, Pergamon, 1953.
- [13] A. BLANC ET AL., *Spectroscopy of neutron rich nuclei using cold neutron induced fission of actinide targets at the ILL : The EXILL campaign*, EPJ Web of Conferences, 62 (2013), p. 01001.
- [14] J. W. BOLDEMAN, *Nu-bar of  $^{252}\text{Cf}$  – Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements*, NEANDC/INDC – Nuclear Standards File, (1991), p. 108.
- [15] F. D. BROOKS, *A scintillation counter with neutron and gamma-ray discriminators*, Nuclear Instrumentation and Methods, 4 (1959), pp. 151–163.

- [16] U. BROSIA AND S. GROSSMANN, *In the Exit Channel of Nuclear Fission*, Zeitschrift für Physik A, 10 (1983), pp. 177–187.
- [17] R. A. CECIL ET AL., *Improved predictions of neutron detection efficiency for hydrocarbon scintillators from 1 MeV to about 300 MeV*, Nuclear Instruments and Methods, 161 (1979), pp. 439–447.
- [18] S. P. CHABOD, *Neutron slowing-down time in matter*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 669 (2012), pp. 32–46.
- [19] M. B. CHADWICK ET AL., *ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology : Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data*, Nuclear Data Sheets, 112 (2011), pp. 2887–2996.
- [20] A. CHYZH ET AL., *Total prompt gamma-ray emission in fission of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239,241}\text{Pu}$ , and  $^{252}\text{Cf}$* , Physical Review C, 90 (2014), p. 014602.
- [21] N. COLONNA ET AL., *A modular array for neutron spectroscopy in low- and intermediate-energy heavy-ion reactions*, Nuclear Instruments and Methods A, 381 (1996), pp. 472–480.
- [22] N. COLONNA AND G. TAGLIENTE, *Response of liquid scintillator detectors to neutrons of  $E_n < 1\text{ MeV}$* , Nuclear Instruments and Methods A, 416 (1998), pp. 109–114.
- [23] W. CROOKES, *The Emanations of Radium*, Proceedings of the Royal Society of London, 71 (1903), pp. 405–408.
- [24] S. C. CURRAN AND W. R. BAKER, *Photoelectric Alpha Particle Detector*, Review of Scientific Instruments, 19 (1948), p. 116.
- [25] N. DACHEUX AND J. AUPIAIS, *Determination of Uranium, Thorium, Plutonium, Americium, and Curium ultratraces by Photon Electron Rejecting Alpha Liquid Scintillation*, Analytical Chemistry, 69 (1997), pp. 2275–2282.
- [26] Y. DANON ET AL., *Measurements with the high flux lead slowing-down spectrometer at LANL*, Nuclear Instrumentation and Methods B, 261 (2007), pp. 953–955.
- [27] A. D'EER ET AL., *Neutron-induced fission of the 26 min  $^{235}\text{U}$  isomer*, Physical Review C, 38 (1988), p. 1270.
- [28] D. L. DEXTER, *A Theory of Sensitized Luminescence in Solids*, Journal of Chemical Physics, 21 (1953), pp. 836–850.
- [29] B. C. DIVEN ET AL., *Multiplicities of Fission Neutrons*, Physical Review, 101 (1956), pp. 1012–1015.
- [30] N. DUBRAY ET AL., *Structure properties of  $^{226}\text{Th}$  and  $^{256,258,260}\text{Fm}$  fission fragments : Mean-field analysis with the Gogny force*, Physical Review C, 77 (2008), p. 014310.
- [31] T. R. ENGLAND AND B. F. RIDE, *Evaluation and Compilation of Fission Product Yields*, LA-UR-94-3106 ENDF-349, (1993).
- [32] D. ETASSE ET AL., *Fast Acquisition System for nuclear Research*. <http://faster.in2p3.fr>.
- [33] R. D. EVANS, *The Atomic Nucleus*, McGraw-Hill, Inc., 1955.
- [34] J. FRÉHAUT, *Use of the large gadolinium-loaded liquid scintillator technique for  $(n, 2n)$  and  $(n, 3n)$  cross section measurements*, Nuclear Instruments and Methods, 135 (1976), pp. 511–518.

- [35] —, *Neutron-gamma competition in fast fission*, International Nuclear Data Committee - Physics of neutron emission in fission, (1989), pp. 99–112.
- [36] —, *Neutron multiplicity distribution in fast neutron-induced fission*, International Nuclear Data Committee - Physics of neutron emission in fission, (1989), pp. 81–92.
- [37] R. C. A. FUH, *PhotochemCAD spectra database*. <http://omlc.org/spectra/PhotochemCAD/index.html>.
- [38] T. FÖRSTER, *Radiation Research Supplement*, 2 (1960), pp. 326–339.
- [39] C. GAUTHERIN, *Isomérisme nucléaire dans les fragments de fission produits dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$* , PhD thesis, Université Blaise Pascal, 1997.
- [40] J. GINDLER, *Dependence of neutron yield on fragment mass for several low-energy fissioning systems*, *Physical Review C*, 19 (1979), pp. 1806–1819.
- [41] K. GUL ET AL., *Relative neutron detector efficiency and response function measurements with  $^{252}\text{Cf}$  neutron source*, *Nuclear Instruments and Methods A*, 278 (1989), pp. 470–476.
- [42] N. P. HAWKES ET AL., *Measurements of the proton light output function of the organic liquid scintillator NE213 in several detectors*, *Nuclear Instruments and Methods A*, 476 (2002), pp. 190–194.
- [43] G. HEMPLE ET AL., *Development of parallel-plate avalanche counters for the detection of fission fragments*, *Nuclear Instruments and Methods*, 131 (1975), pp. 445–450.
- [44] D. A. HICKS ET AL., *Probabilities of Prompt-Neutron Emission from Spontaneous Fission*, *Physical Review*, 101 (1956), pp. 1016–1020.
- [45] D. L. HORROCKS, *Applications of Liquid Scintillation Counting*, Academic Press, 1974.
- [46] U. JAHNKE ET AL., *A  $4\pi$  neutron multiplicity detector for heavy-ion experiments*, *Lecture Notes in Physics*, 178 (1983), pp. 179–201.
- [47] M. C. JOHNSON, *Scintillation purification and study of light propagation in a large liquid scintillating detector*, PhD thesis, Princeton University, 1998.
- [48] H. KALLMAN, *Z. Naturforsch*, A 2 (1947), p. 642.
- [49] G. F. KNOLL, *Radiation Detection and Measurement (third edition)*, John Wiley and Sons, 1999.
- [50] N. V. KORNILOV ET AL., *Neutron emission in fission*, *Nuclear Physics A*, 789 (2007), pp. 55–72.
- [51] Y. KURODA ET AL., *A mobile antineutrino detector with plastic scintillators*, *Nuclear Instruments and Methods A*, 690 (2012), pp. 41–47.
- [52] T. KÖGLER ET AL., *Light yield and  $n$ - $\gamma$  pulse shape discrimination of liquid scintillators based on linear alkyl benzene*, *Nuclear Instrumentation and Methods A*, 701 (2013), pp. 285–293.
- [53] LANL, *Monte Carlo N-Particle eXtended*, (2008).
- [54] I. LANTUEJOUL, *Etude expérimentale des mécanismes de pré-équilibre dans les réactions  $(n, xn)$* , PhD thesis, Université de Caen/Basse-Normandie, 2004.
- [55] G. LAUSTRIAT, *The luminescence decay of organic scintillators*, *Molecular Crystals*, 4 (1968), pp. 127–145.

- [56] J. H. LEE AND C. S. LEE, *Response function of NE213 scintillator for 0,5-6 MeV neutrons measured by an improved pulse shape discrimination*, Nuclear Instruments and Methods A, 402 (1998), pp. 147–154.
- [57] S. LEMAIRE ET AL., *Monte Carlo approach to sequential neutron emission from fission fragments*, Physical Review C, 72 (2005), p. 024601.
- [58] O. LITAIZE AND O. SEROT, *Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and  $\gamma$  emission*, Physical Review C, 82 (2010), p. 054616.
- [59] J. E. LYNN AND A. C. HAYES, *Theoretical evaluations of the fission cross section of the 77 eV isomer of  $^{235}\text{U}$* , Physical Review C, 67 (2003), p. 014607.
- [60] L. MADANSKY AND R. W. PIDD, *Characteristics of the Parallel-Plate Counter*, Physical Review, 73 (1948), p. 1215.
- [61] J. W. MARSH ET AL., *High resolution measurements of neutron energy spectra from Am-Be and Am-B neutron sources*, Nuclear Instruments and Methods A, 366 (1995), pp. 340–348.
- [62] F. H. MARSHALL AND J. W. COLTMAN, *The Photomultiplier Radiation Detector*, Physical Review, 71 (1947), p. 528.
- [63] J. W. MCKVLEEN AND W. J. MCDOWELL, *Liquid Scintillation Alpha Spectrometry Techniques*, Nuclear Instrumentation and Methods, 223 (1984), p. 372.
- [64] L. MEITNER AND O. R. FRISCH, *Desintegration of Uranium by Neutrons : a New Type of Nuclear Reaction*, Nature, 143 (1939), p. 239.
- [65] M. S. MOORE ET AL., *Experimental assessment of the performance of a proposed lead slowing-down spectrometer at WNR/PSR*, AIP Conference Proceedings, 238 (1991), p. 953.
- [66] S. W. MOSER ET AL., *Principles and practice of plastic scintillator design*, Radiation Physics and Chemistry, 41 (1993), pp. 31–36.
- [67] A. A. NAQVI ET AL., *Fission fragment properties in fast-neutron-induced fission of  $^{237}\text{Np}$* , Physical Review C, 34 (1986), pp. 218–225.
- [68] A. A. NAQVI, F. Z. KHIARI, A. AKSOY, A. COBAN, AND M. A. AL-JALAL, *Light yields measurements of a NE213 detector for 2,8-14,8 MeV neutrons*, Nuclear Instruments and Methods A, 325 (1993), pp. 574–577.
- [69] E. NARDI ET AL., *Total energy associated with prompt gamma-ray emission in the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$* , Physical Review C, 8 (1973), pp. 2293–2297.
- [70] J. N. NEILER ET AL., *Fission-Fragment Energy-Correlation Measurements for the Thermal-Neutron Fission of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$* , Physical Review, 149 (1966), pp. 894–905.
- [71] H. NIFENECKER ET AL., *Gamma-neutron competition in the de-excitation mechanism of the fission fragments of  $^{252}\text{Cf}$* , Nuclear Physics A, 189 (1972), pp. 285–304.
- [72] S. NORMAND ET AL., *Discrimination methods between neutron and gamma rays for boron loaded plastic scintillators*, Nuclear Instruments and Methods A, 484 (2002), pp. 342–350.

- [73] A. OBERSTEDT ET AL., *Improved values for the characteristics of prompt-fission gamma-ray spectra from the reaction  $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$* , Physical Review C, 87 (2013), p. 051602.
- [74] S. OBERSTEDT ET AL., *Artificial diamonds as radiation-hard detectors for ultra-fast fission-fragment timing*, Nuclear Instruments and Methods A, 714 (2013), pp. 31–37.
- [75] R. W. PEELLE AND F. C. MAIENSCHEIN, *Spectrum of photons emitted in coincidence with fission of  $^{235}\text{U}$  by thermal neutrons*, Physical Review C, 3 (1971), pp. 373–390.
- [76] A. G. PIEPKE ET AL., *Development of a Gd-loaded liquid scintillator for electron anti-neutrino spectroscopy*, Nuclear Instruments and Methods A, 432 (1999), pp. 392–398.
- [77] F. PLEASANTON, *Prompt gamma rays emitted in the thermal-neutron-induced fission of  $^{233}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$* , Nuclear Physics A, 213 (1973), pp. 413–425.
- [78] F. PLEASANTON ET AL., *Prompt gamma rays emitted in the thermal-neutron-induced fission of  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  and the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$* , Oak Ridge National Laboratory Physics Division Report, ORNL-4844 (1972), pp. 109–112.
- [79] —, *Prompt gamma rays emitted in the thermal-neutron-induced fission of  $^{235}\text{U}$* , Physical Review C, 6 (1972), pp. 1023–1039.
- [80] J. POITOU AND C. SIGNARBIEUX, *A Monte-Carlo simulation of the capture and detection of neutrons with large liquid scintillators*, Nuclear Instruments and Methods, 114 (1974).
- [81] F. REINES AND C. L. COWAN, *A Proposed Experiment to Detect the Free Neutrino*, Physical Review, 90 (1953), pp. 492–493.
- [82] —, *Free Antineutrino Absorption Cross Section. I. Measurement of the Free Antineutrino Absorption Cross Section by Protons*, Physical Review, 113 (1959), pp. 273–279.
- [83] D. ROCHMAN ET AL., *Characteristics of a lead slowing-down spectrometer coupled to the LANSCE accelerator*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 550 (2005), pp. 397–413.
- [84] —, *Cross-section measurement for  $^{239}\text{Pu}(n,f)$  and  $^6\text{Li}(n,\alpha)$  with a lead slowing-down spectrometer*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 564 (2006), pp. 400–404.
- [85] K. H. SCHMIDT AND B. JURADO, *Entropy Driven Excitation Energy Sorting in Superfluid Fission Dynamics*, Physical Review Letters, 104 (2010), p. 212501.
- [86] R. P. SCHMITT ET AL., *A flexible  $4\pi$  neutron detector for in-beam studies : the Texas A&M neutron ball*, Nuclear Instruments and Methods A, 354 (1995), pp. 487–495.
- [87] A. B. SMITH ET AL., *Prompt gamma rays accompanying the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$* , Physical Review, 104 (1956), pp. 699–702.
- [88] D. L. SMITH ET AL., *Measurement of the response of several organic scintillators to electrons, protons and deuterons*, Nuclear Instruments and Methods, 64 (1968), pp. 157–166.

- [89] M. SPIVAK, *Calculus*, Publish or Perish, 1967.
- [90] A. STOLARZ ET AL., *Actinide target preparation at IRMM - then and now*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 613 (2010), pp. 351–356.
- [91] W. L. TALBERT JR. ET AL., *Thermal-neutron fission cross section of 26.1-min  $^{235}\text{U}^m$* , Physical Review C, 36 (1987), p. 1896.
- [92] C. VARIGNON ET AL., *A new neutron beam line for  $(n, xn)$  reaction studies*, Nuclear Instruments and Methods B, 248 (2006), pp. 329–335.
- [93] V. V. VERBINSKI ET AL., *Calibration of an organic scintillator for neutron spectrometry*, Nuclear Instruments and Methods, 65 (1968), pp. 8–25.
- [94] —, *Prompt Gamma Rays from  $^{235}\text{U}(n, f)$ ,  $^{239}\text{Pu}(n, f)$ , and Spontaneous Fission of  $^{252}\text{Cf}$* , Physical Review C, 7 (1973), p. 1173.
- [95] V. E. VIOLA ET AL., *Systematics of fission fragment total kinetic energy release*, Physical Review C, 31 (1985), pp. 1550–1552.
- [96] C. WAGEMANS, *The Nuclear Fission Process*, CRC Press, 1991.
- [97] S. L. J. WHETSTONE, *Coincident Time-of-Flight Measurements of the Velocities of  $^{252}\text{Cf}$  Fission Fragments*, Physical Review, 131 (1963), p. 1232.
- [98] J. B. WILHELMY ET AL., *Angular Momentum of Primary Products Formed in the Spontaneous Fission of  $^{252}\text{Cf}$* , Physical Review C, 5 (1972), p. 2041.
- [99] R. A. WINYARD AND G. W. MCBETH, *Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators*, Nuclear Instruments and Methods, 98 (1972), pp. 525–533.
- [100] M. YEH, A. GARNOV, AND R. L. HAHN, *Gd-loaded liquid scintillator for high-precision measurements of antineutrino oscillations and the mixing angle  $\theta_{13}$* , Nuclear Instruments and Methods A, 578 (2007), pp. 329–339.
- [101] S. YOSHIDA ET AL., *Ultra-violet wavelength shift for undoped  $\text{CaF}_2$  scintillation detector by two phase of liquid scintillator system in CANDLES*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 601 (2009), pp. 282–293.
- [102] W. YOUNES ET AL., *Preliminary Report on the Population of the  $^{235}\text{U}$   $T_{1/2} = 25$ -minute Isomer by the  $(n, n'\gamma)$  Reaction*, UCRL-ID-151071, (2002).
- [103] P. G. YOUNG ET AL., *Comprehensive Nuclear Model Calculations : Introduction to the Theory and Use of the GNASH Code*, Tech. Rep. LA-12343-MS, (1992).
- [104] N. ZAITSEVA ET AL., *Plastic scintillators with efficient neutron/gamma pulse shape discrimination*, Nuclear Instrumentation and Methods A, 668 (2012), pp. 88–93.
- [105] J. F. ZIEGLER, *Srim-2013 and trim codes*. <http://srim.org>.

# Appendices

# Annexe A

## Etude de cocktails scintillants

### A.1 Liquides avec du $^{252}\text{Cf}$

Solvant	Resolution (%)		Rendement $\alpha/\text{FF}$ (%)	Rendements / $r$ DIN		PSD
	$\alpha$	FF		$\alpha$ (%)	FF (%)	
<b>DIN</b>	<b>12,4</b>	<b>19,7</b>	<b>14,5</b>	<b>100</b>	<b>100</b>	<b>bonne</b>
LAB	10,2	21,8	15,1	41,2	42,8	mauvaise
méthylnaphtalène	10,0	18,1	14,4	52,8	52,2	mauvaise
xylène	8,2	14,9	15,4	66,9	70,7	mauvaise
toluène	12,8	29,8	13,6	53	49,8	mauvaise
EJ301	11,1	23,9	11,8	124	98	mauvaise
<b>EJ309</b>	<b>9,4</b>	<b>22,3</b>	<b>15,9</b>	<b>150</b>	<b>160</b>	<b>bonne</b>
EJ315	13,7	23,9	13	85	74	mauvaise
Ultima Gold	10,6	16,5	17,8	25	30	mauvaise

TABLE A.1 – Comparaison des meilleures performances obtenues avec les différents cocktails scintillants liquides étudiés.



## A.2 Plastiques avec du $^{252}\text{Cf}$

mhaD126



FIGURE A.1 – Plastique mhaD126 après polymérisation.

mhaD127



FIGURE A.2 – Plastique mhaD127 après polymérisation.



FIGURE A.3 – Plastique mhaD132 avant (c) et après (a,b) polymérisation.

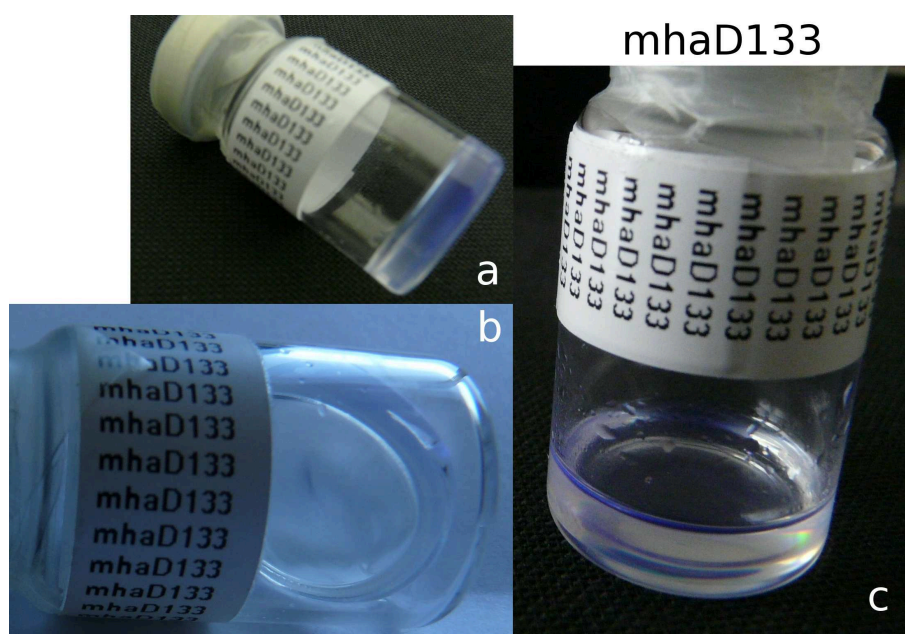


FIGURE A.4 – Plastique mhaD133 avant (c) et après (a,b) polymérisation.

# mhaD134

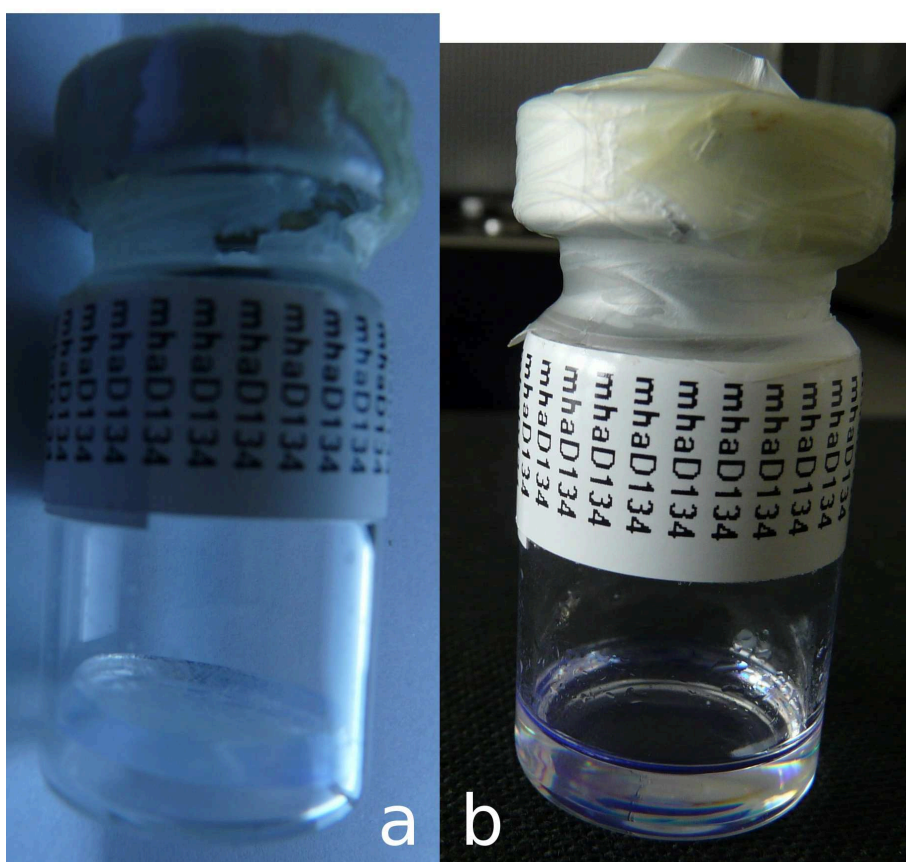


FIGURE A.5 – Plastique mhaD134 avant (b) et après (a) polymérisation.



### A.3 Plastiques avec du $^{252}\text{Th}$

mhaD128



FIGURE A.6 – Plastique mhaD186 après polymérisation.

mhaD135

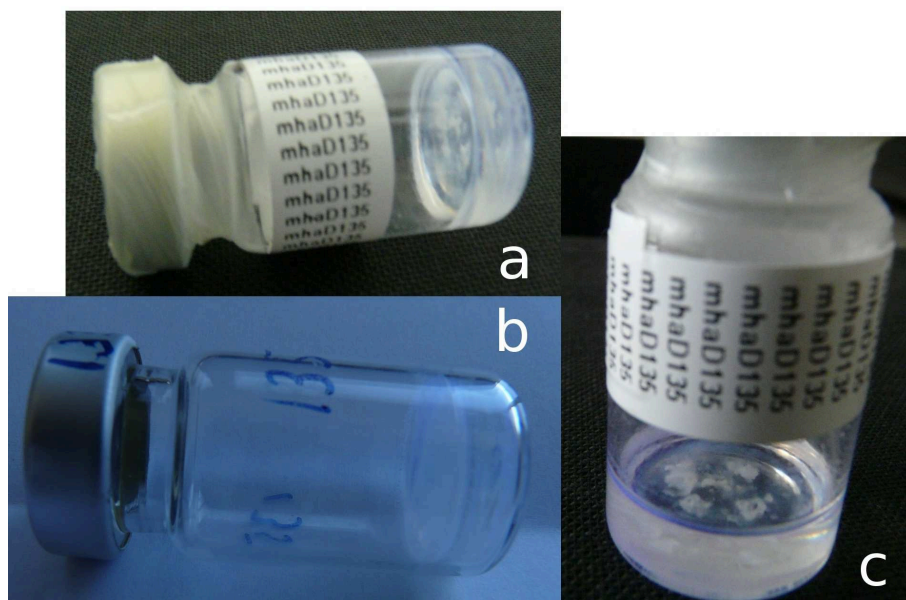


FIGURE A.7 – Plastique mhaD135 avant (c) et après (a,b) polymérisation.

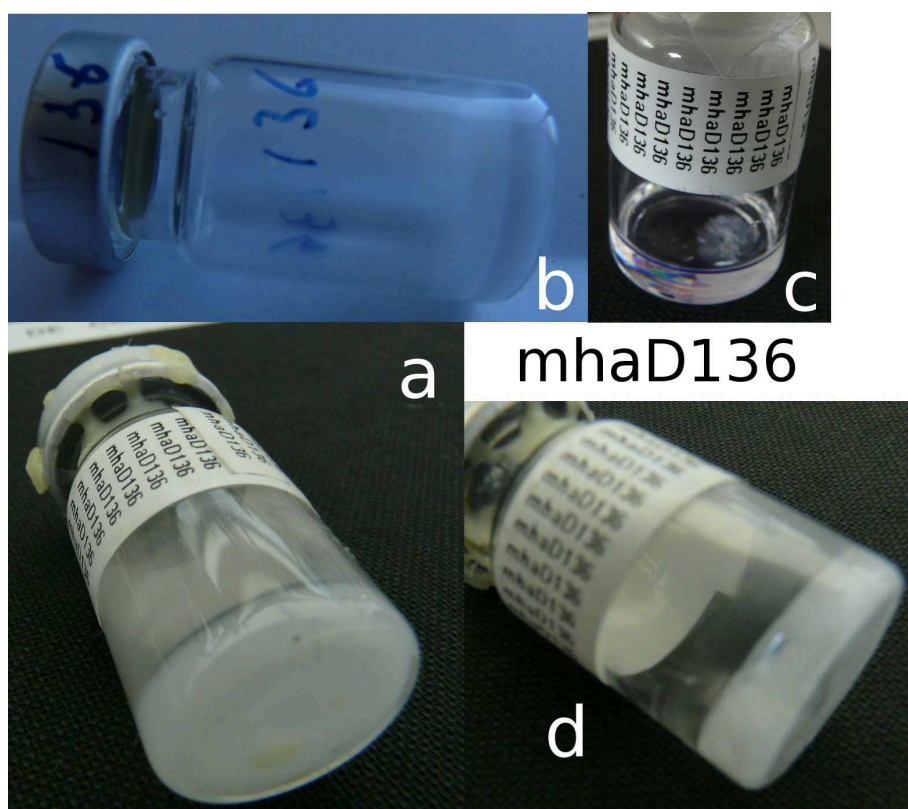


FIGURE A.8 – Plastique mhaD136 avant (c) et après (a,b,d) polymérisation.

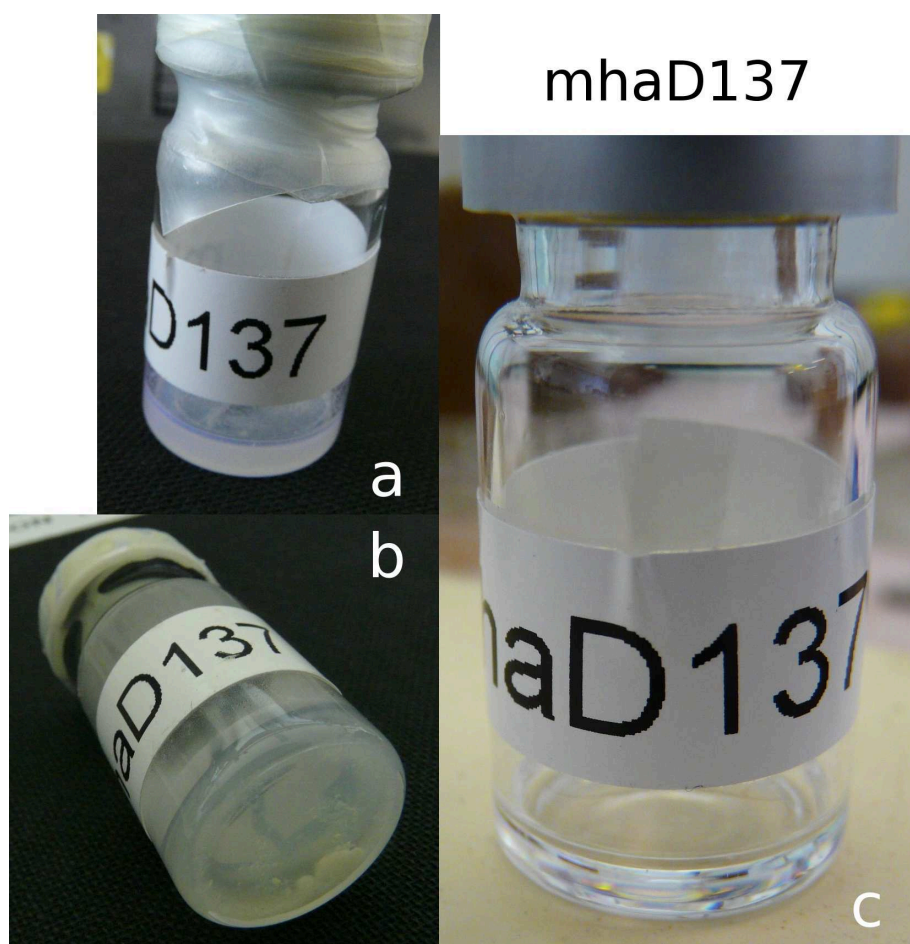


FIGURE A.9 – Plastique mhaD137 avant (c) et après (a,b) polymérisation.

## Annexe B

### Coefficients d'atténuation des photons dans le pseudocumène

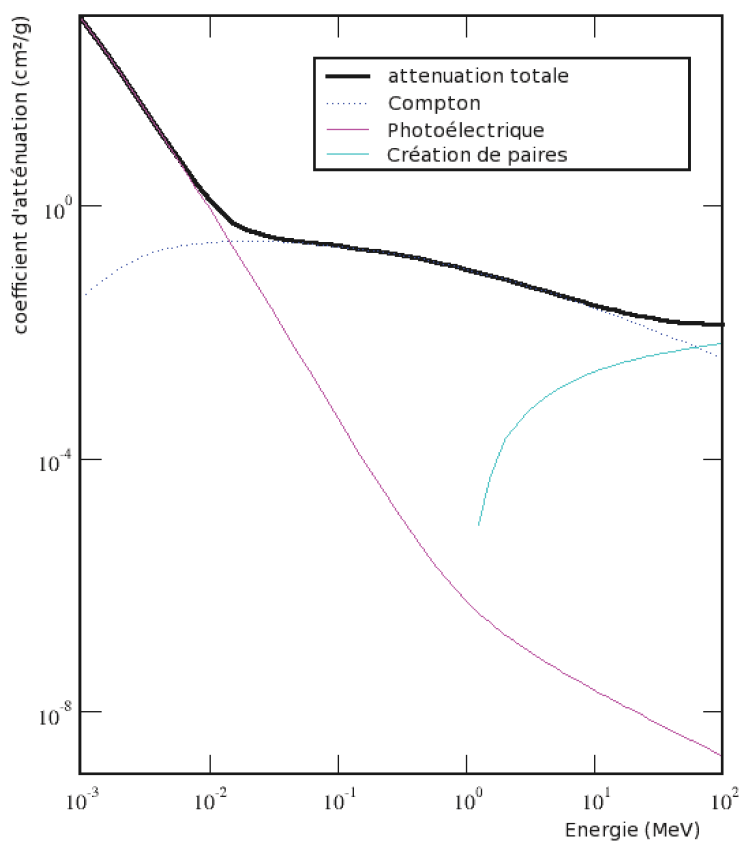


FIGURE B.1 – Coefficient d'atténuation des photons dans le pseudocumène en fonction de l'énergie du photon (NIST Database). Entre la dizaine de kilo-électronvolts et la dizaine de méga-électronvolts, on remarque bien la forte contribution de l'effet Compton (en pointillés bleus) dans l'atténuation totale (en noir), ainsi que la contribution à basse énergie de l'effet photoélectrique (en rose), au dessous de la dizaine de kilo-électronvolts. La création de paire (en vert) intervient à plus haute énergie, à partir du méga-électronvolt.

## Annexe C

### Spectre en énergie des rayonnements gamma émis lors d'une réaction de capture de neutrons par du gadolinium

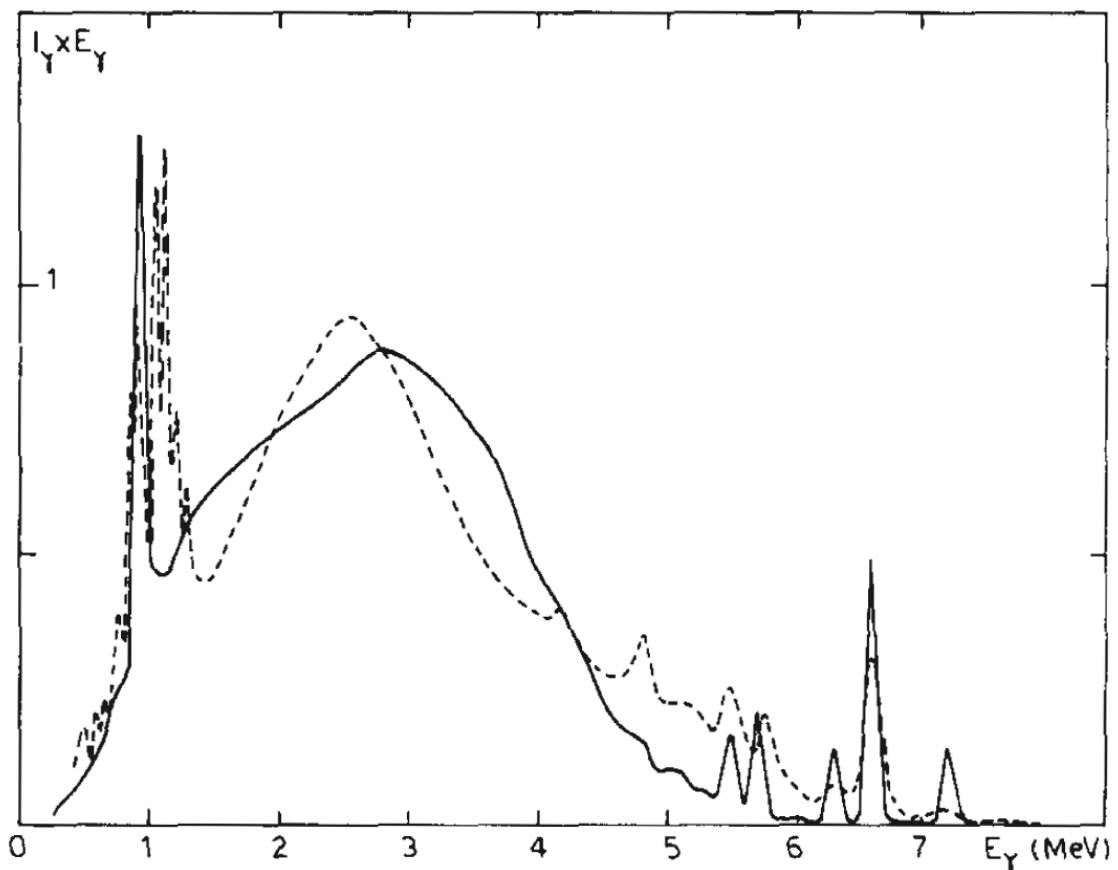


FIGURE C.1 – Spectre en énergie des rayonnements gamma de capture des neutrons thermiques par du gadolinium naturel. Trait plein : une simulation Monte Carlo de *J. Poitou et al.* Traits pointillés : des données publiées par *L.V. Groshev et al.*. Figure tirée de la référence [80].



## Annexe D

### Efficacité de détection des neutrons dans CARMEN

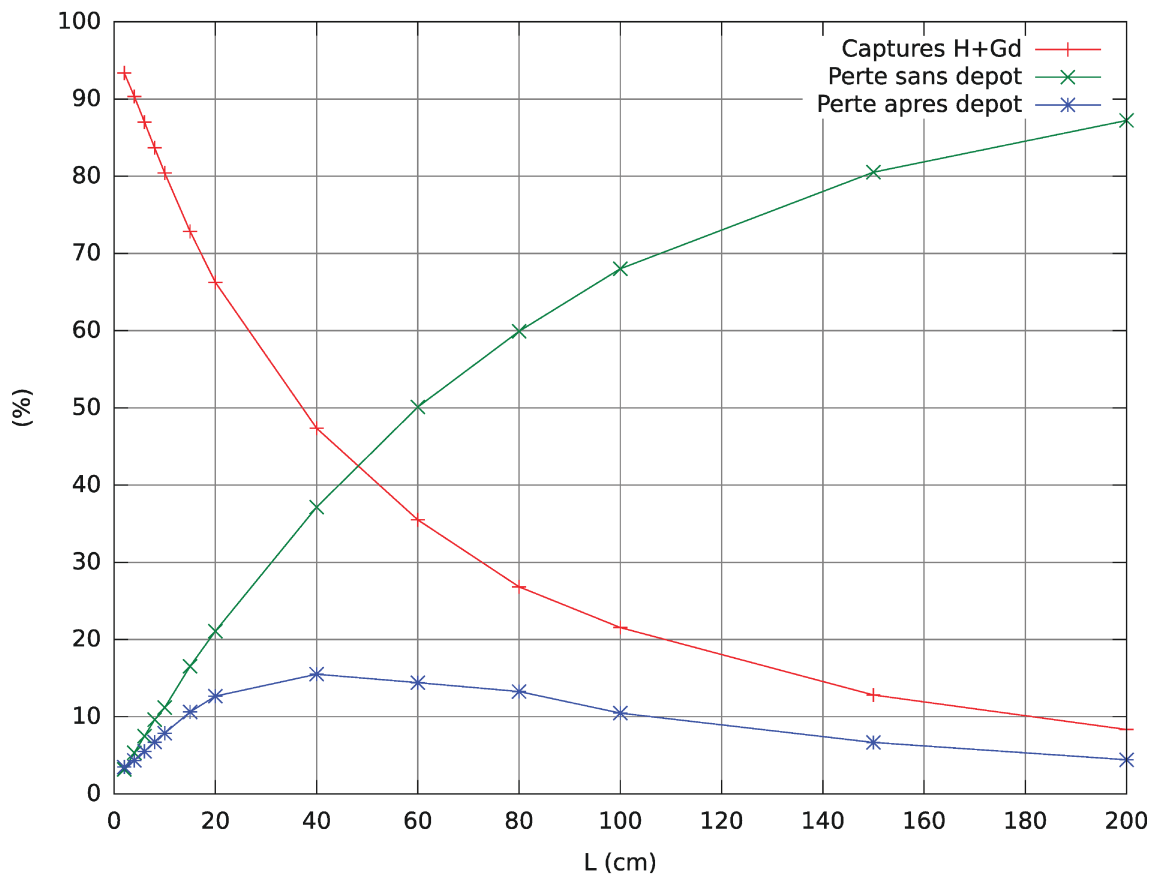


FIGURE D.1 – Evolution de l'efficacité de détection des neutrons en fonction de l'espacement des hémisphères. En rouge, la proportion de captures par le gadolinium et l'hydrogène dans le scintillateur. En vert, le proportion de neutrons s'échappant ne déposant pas d'énergie dans CARMEN. En bleu, la proportion de neutrons déposant de l'énergie dans CARMEN mais n'étant pas capturés.

## Annexe E

# Efficacité de détection des rayonnements gamma dans CARMEN

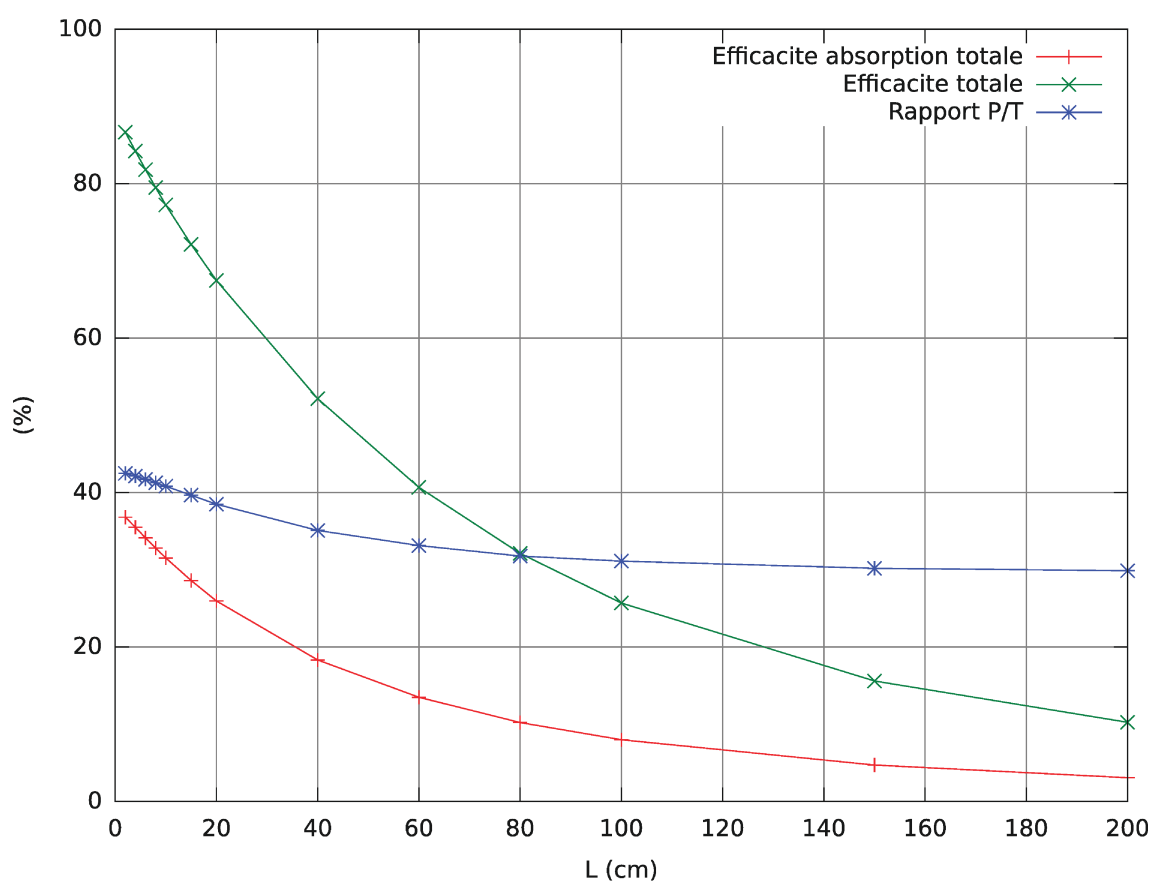


FIGURE E.1 – Evolution de l'efficacité de détection des neutrons en fonction de l'espacement des hémisphères. L'efficacité d'absorption totale est en rouge, l'efficacité totale est en vert et le rapport pic sur total est en bleu.

## Annexe F

# Simulations Monte-Carlo pour la vérification du calibrage en énergie neutron

### F.1 Géométrie simulée

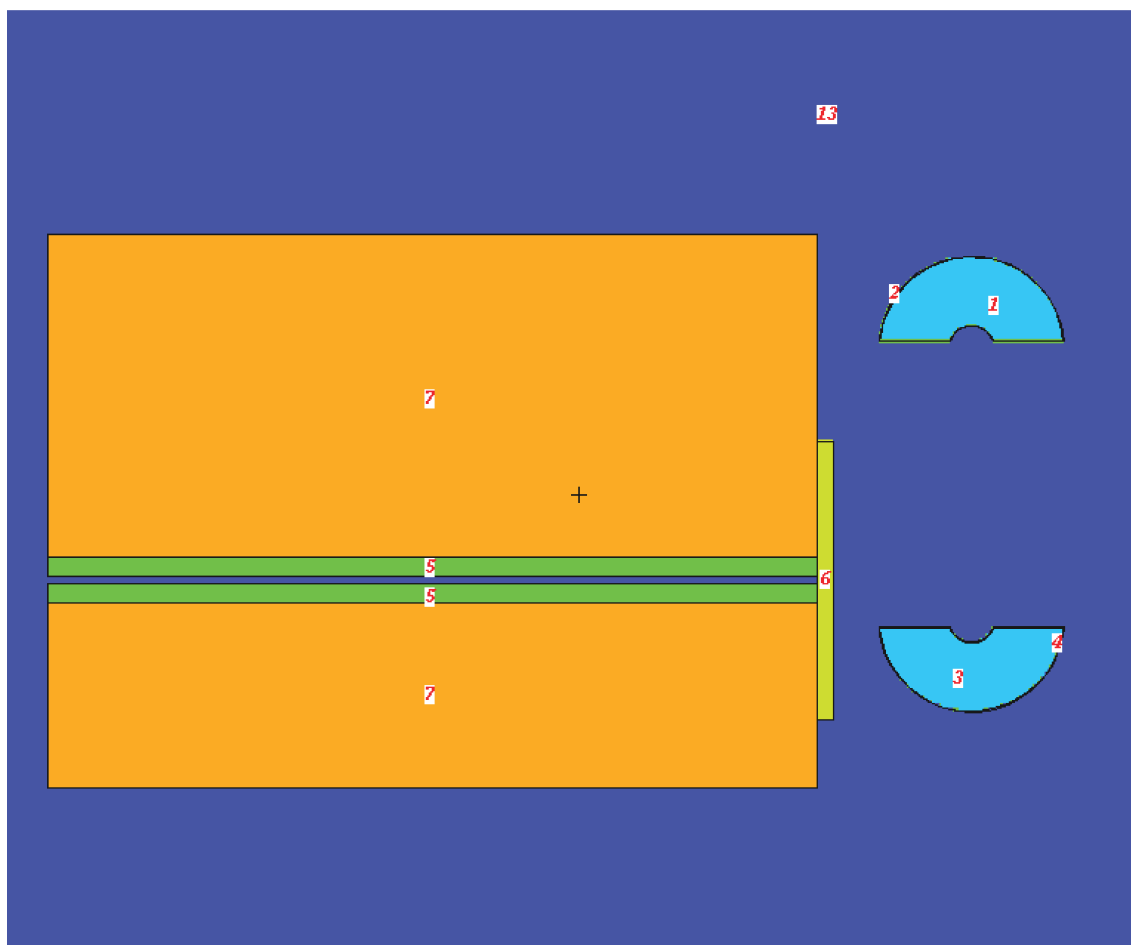


FIGURE F.1 – Géométrie de la simulation en vue de dessus. Les deux hémisphères sont espacés de deux mètres et la casemate est représentée en jaune.

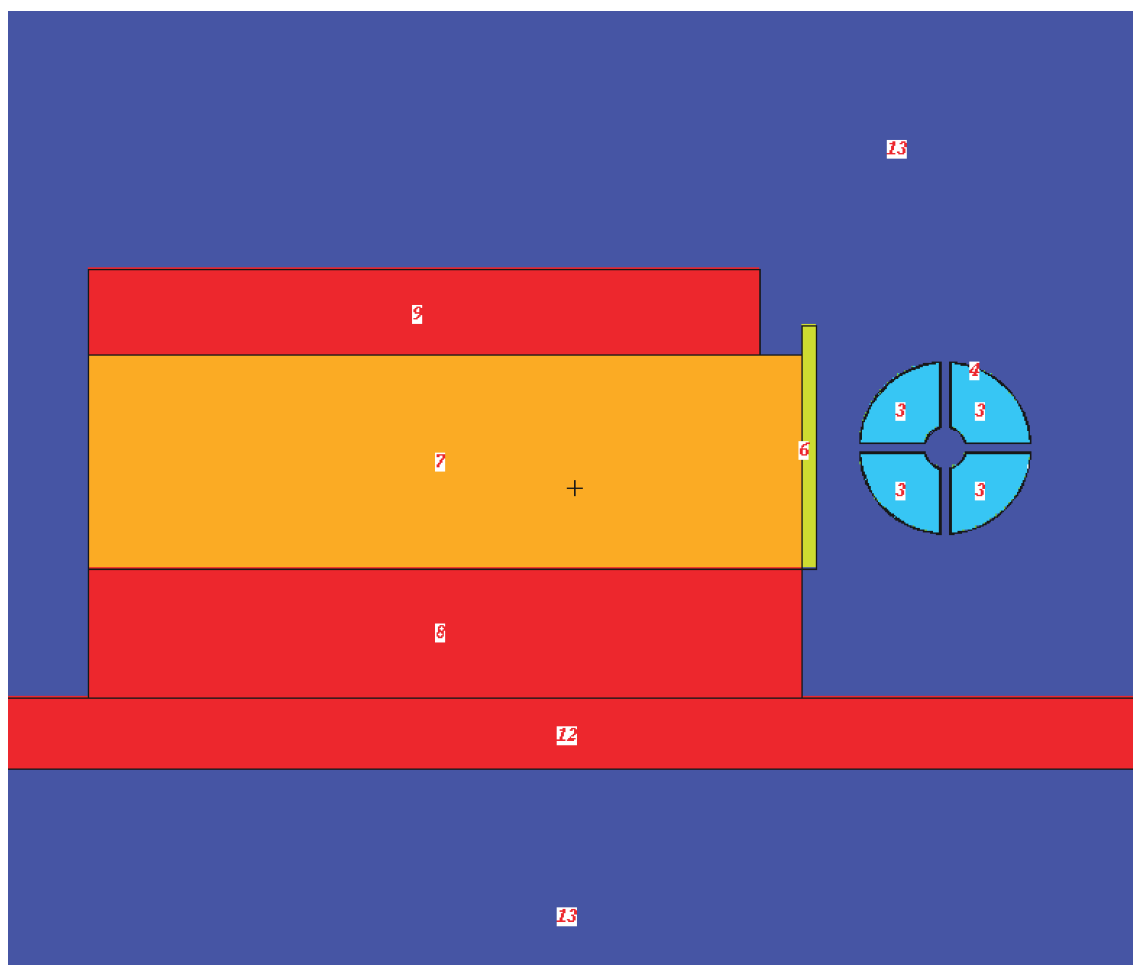


FIGURE F.2 – Géométrie de la simulation en vue de côté. Le sol est représenté en rouge.

## F.2 Spectres en énergie des neutrons émis par une source Am-Be utilisés pour les simulations

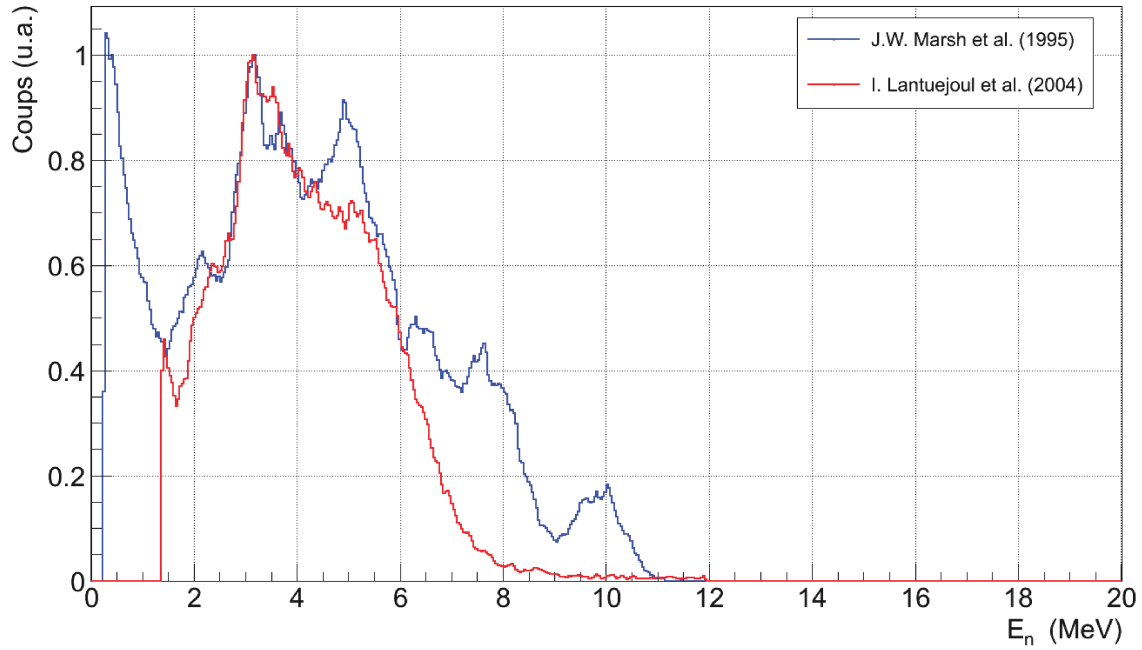


FIGURE F.3 – Spectres en énergie des neutrons émis par une source Am-Be. Trait bleu : mesures de *J.W. Marsh et al.*[61]. Trait rouge : mesures de *I. Lantuejoul et al.*[54] (neutrons en coïncidence avec des rayonnements gamma de 4,4 MeV uniquement).

# Table des figures

1	Représentation schématique du processus de fission extrait de la référence [96]. . . . .	2
2	Energie cinétique moyenne individuelle des fragments en fonction de leur masse pour la fission induite par neutrons thermiques du $^{239}\text{Pu}$ . Figure extraite de la référence [70]. . . . .	3
3	(a) Multiplicité de neutrons prompts en fonction de la masse des fragments primaires dans la fission spontanée du $^{256}\text{Fm}$ . Les cercles ouverts représentent des mesures par J. Gindler [40] et les cercles pleins représentent les calculs par N. Dubray et al. [30]. (b) Multiplicité de neutrons prompts en fonction de la masse des fragments primaires dans la fission induite par neutrons rapides du $^{237}\text{Np}$ mesurée par A.A. Naqvi [67]. . . . .	5
4	Multiplicité moyenne de neutrons (échelle de gauche) et énergie totale gamma rayonnée (relative au $^{252}\text{Cf}$ , échelle de droite) en fonction de l'énergie du neutron incident pour la fission induite par neutrons rapides du $^{232}\text{Th}$ (a), $^{235}\text{U}$ (b) et $^{237}\text{Np}$ (c). . . . .	7
1.1	Parcours et pouvoir d'arrêt des protons dans le toluène en fonction de leur énergie. . . . .	18
1.2	Parcours et pouvoir d'arrêt des alphas dans le toluène en fonction de leur énergie. . . . .	19
1.3	Parcours et pouvoir d'arrêt de l'étain 132 dans le toluène en fonction de leur énergie. . . . .	19
1.4	Représentation schématique de la diffusion élastique d'un neutron sur un noyau . . . . .	20
1.5	Représentation des effets photoélectrique, Compton et de création de paire. . . . .	21
1.6	Domaine de prévalence des effets photoélectrique, Compton et de création de paire en fonction de l'énergie des photons et du numéro atomique effectif du milieu traversé [33]. . . . .	22
1.7	Coefficient d'atténuation des photons dans le pseudocumène en fonction de l'énergie (NIST Database). . . . .	23
1.8	Schématisation du dépôt d'énergie d'une particule dans un scintillateur liquide organique. . . . .	24
1.9	Pouvoir d'arrêt des protons, alphas et ions lourds dans le toluène en fonction de leur parcours. . . . .	26
1.10	Comparaison des spectres de fluorescence et d'absorption du toluène[37], PPO[37] et bis-MSB[101] mesurés dans du cyclohexane. . . . .	30

1.11	Diagrammes de Jablonski simplifiés : à gauche représentant les processus d'absorption et d'émission de fluorescence dans une molécule aromatique ; à droite représentant le processus de scintillation simplifié au sein d'un cocktail scintillant à base de trois molécules. . . . .	31
2.1	Représentation schématique du système de comptage en tube à essai.	35
2.2	Représentation schématique du système de comptage en cellule cylindrique. . . . .	35
2.3	Représentation schématique de la réflexion de photons pour différents angles incidents provenant de la cellule scintillante dans deux guides optiques de diamètre différent. . . . .	37
2.4	Représentation schématique des effets de bord dans le scintillateur pour des alphas et des fragments de fission. La partie bleu claire représente l'épaisseur de peau. . . . .	39
2.5	Représentation schématique de la géométrie cylindrique utilisée pour les simulations. Les parties grises, vertes et rouges représentent la peau où peuvent avoir lieu des pertes de comptage. La partie bleu représente la quantité de liquide où aucune perte de comptage n'a lieu.	39
2.6	Représentation schématique de la géométrie en tube à essai utilisée pour les simulations. Les parties rouge, jaune et grise et vertes représentent la peau où peuvent avoir lieu des pertes de comptage. La partie bleu représente la quantité de liquide où aucune perte de comptage n'a lieu. . . . .	40
2.7	Spectres de dépôt d'énergie d'un alpha de 6, 118 MeV dans quatre cellules cylindrique, tube à essai, hémisphérique et sphérique de volume 1 cm <sup>3</sup> contenant du DIN. . . . .	41
2.8	Spectres de dépôt d'énergie de la paire de fragments de fission <sup>109</sup> Ru/ <sup>143</sup> Ba dans quatre cellules : cylindrique, tube à essai, hémisphérique et sphérique de volume 1 cm <sup>3</sup> contenant du DIN. . . . .	42
2.9	Evolution des pertes de comptage en fonction de l'asymétrie de la fission pour une géométrie cylindrique de rayon 3,75 mm et d'épaisseur 2,26 cm contenant du DIN. . . . .	43
2.10	Evolution des pertes totales de comptage des fissions en fonction du rayon et de l'épaisseur d'une cellule cylindrique contenant du DIN. . .	45
2.11	Evolution du taux de pertes de comptage en fonction du seuil de détection de la fission pour une cellule cylindrique d'épaisseur 5,0 mm et de rayon 15 mm. . . . .	46
2.12	Spectres en énergie simulés pour des neutrons d'énergie incidente 1 MeV ayant induit une fission dans la cible active scintillante. . . . .	48
2.13	Taux de distorsion simulé du spectre de neutrons en fonction de l'épaisseur de différentes cellules en aluminium, en quartz, en acier inoxydable et en acrylique, pour des neutrons incidents d'énergie 1 MeV. L'épaisseur de liquide scintillant est fixée à 1 mm. . . . .	48
2.14	Taux de distorsion simulé du spectre de neutrons dans une cellule en aluminium d'épaisseur 1 mm en fonction de l'épaisseur de liquide scintillant. L'énergie incidente des neutrons est de 1 MeV pour la courbe rouge, 5 MeV pour la courbe verte, 10 MeV pour la courbe bleue et 20 MeV pour la courbe orange. . . . .	49

2.15	Signaux de fluorescence moyens des évènements fission, alpha et gamma dans une cible active scintillante en EJ-309 dopée au $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	50
2.16	Représentation schématique de la méthode de la PSD appliquée à un signal de photomultiplicateur. . . . .	51
2.17	Histogramme de discrimination des évènements dans une cible active scintillante à base d'EJ309 et contenant du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	52
2.18	Histogramme de discrimination des évènements dans une cible active scintillante à base DIN contenant 1 kBq de $^{252}\text{Cf}$ sous faisceau de neutrons de 18 MeV. . . . .	52
2.19	Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de longueur de la porte rapide d'origine fixée à $t_0 = 10$ ns. . . . .	54
2.20	Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de longueur de la porte rapide d'origine fixée à $t_0 = 21$ ns. . . . .	54
2.21	Facteurs de mérite pour la discrimination alpha-fission (en vert), alpha-gamma (en rouge) et fission-gamma (en bleu) en fonction de l'origine de la porte rapide de durée fixée à 10 ns. . . . .	55
2.22	Facteur de mérite pour la discrimination proton-fission en fonction de la charge totale. . . . .	56
2.23	Exemple de signaux échantillonnés (haut) et de leurs signaux dérivés correspondants (bas). . . . .	58
2.24	Exemple de signal de pile-up $\text{PU}(t)$ construit à partir des deux signaux présentées sur la figure 2.23. . . . .	59
2.25	Histogramme de discrimination d'une cible active scintillante contenant 1 mg de $^{232}\text{Th}$ sous faisceau de neutrons de 2,2 MeV sans réjection des empilements. . . . .	60
2.26	Histogramme de discrimination d'une cible active scintillante contenant 1 mg de $^{232}\text{Th}$ sous faisceau de neutrons de 2,2 MeV après réjection des empilements. . . . .	61
2.27	Distribution en temps des empilements détectés sur la partie décroissante du signal principal. . . . .	61
2.28	Histogramme bidimensionnel représentant l'énergie des rayonnements gammas détectés par un germanium en fonction du temps après la fission dans la cible active. . . . .	63
2.29	Distribution en charge totale $Q_{\text{tot}}$ et en $Q_{\text{ratio}}$ des évènements de fission assignés à la paire de fragments tellure/palladium (en bleu) et non assignés à une paire de fragments (en rouge). . . . .	64
2.30	Evolution des rendements en lumière relatifs au DIN pour la fission et les alphas pour les différents solvants étudiés. . . . .	68
2.31	Evolution du rapport des rendements en lumière alphas/fission pour les différents solvants étudiés. . . . .	69
2.32	Evolution des rendements relatifs au DIN pour la fission et les alphas en fonction de la concentration en PPO dans du toluène (haut) et du <i>para</i> -xylène (bas). . . . .	71
2.33	Histogramme de discrimination du mhaD127 en présence d'une source de neutrons (Am-Be). . . . .	73



2.34	Dépôt maximal d'énergie par les protons de recul en fonction de l'énergie du neutron incident dans le liquide scintillant pour différentes épaisseurs de cellules. . . . .	76
2.35	Dispositif expérimental utilisé pour l'étude de vieillissement à l'ILL. .	78
2.36	Histogramme de discrimination des événements dans le DIN, mesure effectuée à 11 mm hors faisceau en début d'irradiation. Encart : projection sur la charge totale . . . . .	79
2.37	Evolution du rendement en lumière des fragments de fission relatif au début de l'irradiation pour différents cocktails scintillants : Alphaex, C <sub>6</sub> F <sub>6</sub> , DIN et EJ309. . . . .	80
3.1	Rapport des sections efficaces de fission induite par neutron de l' <sup>235m</sup> U sur l' <sup>235</sup> U. Figure extraite de la référence [59]. . . . .	84
3.2	Rapport de peuplement par diffusions inélastiques de l'état isomérique par rapport à l'état fondamental de l' <sup>235</sup> U en fonction de l'énergie du neutron incident. Figure extraite de la référence [102]. . . . .	85
3.3	Schéma des différentes installations du LANSCE : l'accélérateur fournit un faisceau de protons de 800 MeV qui peut être envoyé sur différentes cibles dont celles de WNR (en bleu) et notamment dans la <i>Blue Room</i> ou <i>Target 2</i> où est installé le LSDS. . . . .	87
3.4	Flux de neutrons en fonction de l'énergie des neutrons sur les différentes faces de cible de spallation en tungstène de WNR, un cylindre de diamètre 5 cm et de hauteur 25 cm. Figure extraite de la référence [83]. . . . .	88
3.5	Schéma du massif de plomb installé au WNR. Figure extraite de la référence [83]. . . . .	88
3.6	Cible active scintillante couplée à un tube photomultiplicateur H10580 via un guide optique en titane coudé de 20°. . . . .	89
3.7	Spectres en énergie non calibrés de la décroissance alpha de l' <sup>235</sup> U dans de l'EJ-309 (à gauche) et du DIN (à droite), après la fabrication des cibles actives. . . . .	90
3.8	Spectres en énergie non calibrés de la décroissance alpha de l' <sup>235</sup> U dans de l'EJ-309 (à gauche) et du DIN (à droite), avant les mesures sur le LSDS. . . . .	91
3.9	Figure de discrimination des événements dans le DIN en mode LINAC.	91
3.10	Figure de discrimination des événements dans l'EJ-309 en mode LINAC.	92
3.11	Temps de diffusion dans le massif de plomb des neutrons associés à un événement dans la cellule DIN en mode LINAC. . . . .	93
3.12	Temps de diffusion dans le massif de plomb des neutrons associés à une fission dans la cellule DIN en mode LINAC. . . . .	93
3.13	Section efficace de fission non normalisée de l' <sup>235</sup> U, mesurée avec une cellule DIN en mode LINAC. Les points noirs correspondent à la mesure. La courbe verte correspond à des données de la base ENDF/B-VII.1 convoluées par la résolution en énergie du LSDS. . . . .	94
3.14	Représentation schématique du chronogramme des événements dans la cible active. . . . .	95

3.15	Comparaison de la résolution en énergie du LSDS et de l'erreur relative sur le calcul de l'énergie du neutron selon la référence en temps choisie, en fonction du temps de diffusion des neutrons. . . . .	96
3.16	Figures de discrimination des évènements dans le DIN en mode PSR. . .	96
4.1	Le détecteur CARMEN. . . . .	104
4.2	Distribution en temps de capture d'un neutron dans l'hémisphère droit de CARMEN (en bleu) et son ajustement (en rouge). . . . .	106
4.3	Représentation schématique du fonctionnement de CARMEN. . . . .	107
4.4	Evolution de l'efficacité de détection des rayonnements gamma en fonction de leur énergie. L'efficacité d'absorption totale est en rouge, l'efficacité totale est en vert et le rapport pic sur total est en bleu. . .	108
4.5	Evolution de l'efficacité de détection des neutrons en fonction de leur énergie. . . . .	109
4.6	Représentation schématique d'un tube photomultiplicateur (issu de la référence [1]). . . . .	110
4.7	Photo du panier microTCA contenant les cartes FASTER sur lesquelles sont connectés chacun des tubes photomultiplicateurs de CARMEN. . . . .	111
4.8	Représentation schématique d'une carte FASTER. . . . .	111
4.9	Chronogramme simplifié du trigger de l'acquisition dédié à CARMEN.	113
5.1	Spectre d'électron unique d'un tube Photonis XP4512B à une tension de $-2000$ V. . . . .	116
5.2	Comparaison des centroïdes de distribution du photoélectron unique pour chaque tube photomultiplicateur de CARMEN (en rouge) avec leur moyenne (en bleu) après ajustement des tensions. . . . .	116
5.3	Histogramme bidimensionnel représentant l'énergie déposée dans l'hémisphère droit de CARMEN en fonction de l'énergie déposée dans le BGO par les deux rayonnements gamma émis en coïncidence par une source de $^{60}\text{Co}$ . . . . .	117
5.4	Calibration en énergie gamma des hémisphères droit (en rouge) et gauche (en bleu). . . . .	118
5.5	Evolution de la résolution en énergie gamma des hémisphères droit et gauche de CARMEN en fonction de l'énergie. . . . .	118
5.6	Evolution du rapport des charges totales mesurées par l'hémisphère droit et gauche en fonction de l'énergie. . . . .	120
5.7	Spectres de radioluminescence du BC521 par excitation avec une source de Sr/Y (trait plein) et de transmission des photons dans 5 cm de BC521 en fonction de leur longueur d'onde (traits pointillés). Les échantillons de liquide proviennent des hémisphères droit (rouge) et gauche (bleu) de CARMEN. . . . .	123
5.8	Longueur d'atténuation des photons dans du BC521 en fonction de leur longueur d'onde (hémisphère droit en rouge et gauche en bleu). .	124
5.9	Schéma du dispositif de coïncidence entre une cellule de pseudocumène et un détecteur BC501 sur l'accélérateur 4 MV de Bruyères-le-Châtel. . . . .	126

5.10	Comparaison des équivalences proton–électron mesurées pour le BC521 (trait plein) et pour le NE213 (points) issues des références [7, 88, 93, 17, 41, 68, 3, 21, 56, 22]	127
5.11	Schéma du dispositif de coïncidence entre un hémisphère de CARMEN et un détecteur BGO avec une source Am-Be émettant des neutrons et des rayonnements gamma en coïncidence.	128
5.12	Spectre en énergie, mesuré par temps de vol, des neutrons émis en coïncidence avec un rayonnement gamma de 4,4 MeV et détectés par l’hémisphère droit de CARMEN.	129
5.13	Figure de corrélation entre l’énergie mesurée dans CARMEN par temps de vol et par intégration de charge en coïncidence avec un BGO avec une source Am-Be. L’axe des abscisses représente l’énergie neutron par intégration de charge, l’axe des ordonnées l’énergie neutron par temps de vol et la droite rouge représente $E_n^{ToF} = E_n^{CARMEN}$ .	130
5.14	Figure de corrélation entre l’énergie mesurée dans CARMEN par temps de vol et par dépôt d’énergie dans CARMEN, issue de simulations MCNPX v2.6. L’axe des abscisses représente l’énergie déposée par le neutron dans l’hémisphère droit de CARMEN, l’axe des ordonnées l’énergie neutron par temps de vol et la droite rouge représente $E_n^{ToF} = E_n^{CARMEN}$ .	131
5.15	Détail des contributions de retours de neutrons.	132
6.1	Géométrie du détecteur CARMEN telle que modélisée dans MCNPX v2.6. Le scintillateur est en vert, l’enveloppe de fer est en rouge et l’air environnant est en bleu. La figure du haut représente les deux hémisphères espacées de 2 cm en vue de dessus. La figure du bas représente un hémisphère en vue de face.	135
6.2	Distribution du nombre total de collisions par histoire neutron et par histoire gamma.	136
6.3	Evolution de la proportion d’énergie déposée par le neutron au cours de ses $k$ collisions. La proportion moyenne est représentée par les points.	137
6.4	Comparaison entre les durées totales d’une histoire neutron et d’une histoire gamma.	137
6.5	Signaux moyens de fluorescence d’une cellule 2” de BC521 couplée à un tube photomultiplicateur XP4512B dus à un neutron (en bleu) et à un rayonnement gamma (en rouge).	138
6.6	Proportion d’énergie déposée par les rayonnement gamma dans CARMEN.	139
6.7	Comparaison entre la contribution neutron et la proportion de signal gamma mesurée en fonction de la porte d’intégration du pic prompt, pour des rayonnements gamma et des neutrons de fission du $^{252}\text{Cf}$ .	141
6.8	Evolution des efficacités totale gamma (en rouge) et de capture des neutrons (en vert) en fonction de l’espacement des hémisphères. La proportion d’énergie neutron par rapport à l’énergie gamma mesurée sur une porte d’intégration de 40 ns est également représentée en bleu.	146
6.9	Vue de dessus de CARMEN avec une chambre à réaction adaptée à la calorimétrie gamma et neutron.	146

6.10	Contributions neutrons sur une porte de 40 ns et efficacités de détection neutron et gamma pour des rayons internes de 50 cm et 60 cm, en fonction du rayon externe de CARMEN. . . . .	147
A.1	Plastique mhaD126 après polymérisation. . . . .	161
A.2	Plastique mhaD127 après polymérisation. . . . .	161
A.3	Plastique mhaD132 avant (c) et après (a,b) polymérisation. . . . .	162
A.4	Plastique mhaD133 avant (c) et après (a,b) polymérisation. . . . .	162
A.5	Plastique mhaD134 avant (b) et après (a) polymérisation. . . . .	163
A.6	Plastique mhaD186 après polymérisation. . . . .	164
A.7	Plastique mhaD135 avant (c) et après (a,b) polymérisation. . . . .	164
A.8	Plastique mhaD136 avant (c) et après (a,b,d) polymérisation. . . . .	165
A.9	Plastique mhaD137 avant (c) et après (a,b) polymérisation. . . . .	166
B.1	Coefficient d'atténuation des photons dans le pseudocumène en fonction de l'énergie du photon (NIST Database). Entre la dizaine de kilo-électronvolts et la dizaine de méga-électronvolts, on remarque bien la forte contribution de l'effet Compton (en pointillés bleus) dans l'atténuation totale (en noir), ainsi que la contribution à basse énergie de l'effet photoélectrique (en rose), au dessous de la dizaine de kilo-électronvolts. La création de paire (en vert) intervient à plus haute énergie, à partir du méga-électronvolt. . . . .	167
C.1	Spectre en énergie des rayonnements gamma de capture des neutrons thermiques par du gadolinium naturel. Trait plein : une simulation Monte Carlo de <i>J. Poitou et al.</i> Traits pointillés : des données publiées par <i>L.V. Groshev et al.</i> Figure tirée de la référence [80]. . . . .	168
D.1	Evolution de l'efficacité de détection des neutrons en fonction de l'espacement des hémisphères. En rouge, la proportion de captures par le gadolinium et l'hydrogène dans le scintillateur. En vert, le proportion de neutrons s'échappant ne déposant pas d'énergie dans CARMEN. En bleu, la proportion de neutrons déposant de l'énergie dans CARMEN mais n'étant pas capturés. . . . .	169
E.1	Evolution de l'efficacité de détection des neutrons en fonction de l'espacement des hémisphères. L'efficacité d'absorption totale est en rouge, l'efficacité totale est en vert et le rapport pic sur total est en bleu. . . . .	170
F.1	Géométrie de la simulation en vue de dessus. Les deux hémisphères sont espacés de deux mètres et la casemate est représentée en jaune. .	171
F.2	Géométrie de la simulation en vue de côté. Le sol est représenté en rouge. . . . .	172
F.3	Spectres en énergie des neutrons émis par une source Am-Be. Trait bleu : mesures de <i>J.W. Marsh et al.</i> [61]. Trait rouge : mesures de <i>I. Lantuéjoul et al.</i> [54] (neutrons en coïncidence avec des rayonnements gamma de 4,4 MeV uniquement). . . . .	173

# Liste des tableaux

1	Energie totale gamma moyenne rayonnée dans la fission de différents noyaux, mesures provenant de la littérature. . . . .	6
1.1	Caractéristiques générales des différents matériaux scintillants. . . . .	16
1.2	Processus secondaires de désexcitation des états de première excitation $S_1$ et $T_1$ dans les scintillateurs organiques. . . . .	27
2.1	Mesures de transmission en lumière pour différents guides optiques. . . . .	36
2.2	Parcours moyens calculés par le code SRIM-2008 pour des alphas ainsi que des fragments de fission issus de la décroissance du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	38
2.3	Efficacités de détection des fragments de fission (seuil à 87 MeV), des alphas (seuil à 4,1 MeV) et rapport du volume de peau au volume total pour les différentes géométries simulées. . . . .	42
2.4	Composition des différents cocktails scintillants liquides étudiés. . . . .	67
2.5	Composition des différents plastiques scintillants étudiés. . . . .	74
2.6	Taux de fission estimés lors de l'irradiation des cibles actives. . . . .	78
4.1	Composition du scintillateur en fraction atomique. . . . .	104
5.1	Energie des rayonnements gamma produits par les sources utilisées pour la calibration de CARMEN. . . . .	119
5.2	Mesures de rendements de fluorescence du BC521 et du NaI avec un tube photomultiplicateur XP4512B. . . . .	121
6.1	Energie totale gamma moyenne rayonnée dans la fission spontanée du $^{252}\text{Cf}$ , mesures provenant de la littérature. . . . .	144
A.1	Comparaison des meilleures performances obtenues avec les différents cocktails scintillants liquides étudiés. . . . .	160